Modélisation du cycle d'aérosols naturels et anthropiques en Asie orientale

Frédéric Lasserre

▶ **To cite this version:**

Frédéric Lasserre. Modélisation du cycle d'aérosols naturels et anthropiques en Asie orientale. Interfaces continentales, environnement. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2006. Français. NNT : 2006CLF21656 . tel-00691228

HAL Id: tel-00691228

https://theses.hal.science/tel-00691228

Submitted on 25 Apr 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° D'Ordre : D.U. 1656

UNIVERSITE BLAISE PASCAL

U.F.R. Sciences et Technologies

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

N° 489

THESE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique de l'Atmosphère

Par

Frédéric LASSERRE

Diplômé d'Etudes Approfondies

Modélisation du cycle d'aérosols naturels et anthropiques en Asie orientale

Soutenue publiquement le 29 Juin 2006, devant le jury:

Présidente :	**Mme Sylvie CAUTENET**, Professeur à l'Université Blaise Pascal, Laboratoire de Météorologie Physique
Rapporteurs :	**M. Gilles BERGAMETTI,** Directeur de Recherches, CNRS, Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques
	M. Serge DESPIAU, Maître de Conférences à l'Université Toulon-Var, LSEET-LEPI
Examinateur :	**M. Michel LEGRAND**, Professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, Laboratoire d'Optique Atmosphérique
Directeur de thèse :	**M. Guy CAUTENET**, Professeur à l'Université Blaise Pascal, Laboratoire de Météorologie Physique

Laboratoire de Météorologie Physique, U.M.R. 6016, 24 Avenue des Landais, 63177 Aubière Cedex, France.

Préambule, Remerciements,

ou *Ce que je n'aurais pas dû écrire avant la partie scientifique,*
…

si je ne gardais pas un extraordinaire souvenir de la réalisation de cette thèse,
si j'étais politiquement correct,
si je n'étais pas si bavard,
si je n'avais pas 40 ans cette année,
bref, … si je n'étais pas moi …

Eté 1999 … le téléphone sonne sur le bureau d'Andréa Flossmann, Directrice adjointe du LaMP. Andréa décroche et écoute patiemment un prof de lycée à la trentaine bien tassée demander un rendez-vous pour discuter de l'éventuelle et très hypothétique possibilité de suivre un DEA de météorologie Physique.

Début septembre 1999 … voila un étudiant attardé (retardé ?) aux tempes déjà grisonnantes qui pousse la porte du LaMP et reçoit aussitôt l'accueil chaleureux de Jean-Louis Barthout, Cecile Yvetot, Sylviane Bondoux. A peine le temps de serrer les mains … et je remercie sincèrement et de vive voix Andréa Flossmann et Nadine Chaumerliac, directrice du LaMP, de m'accueillir au laboratoire.

Fin septembre 1999 … ça ne rigole plus ! Il faut le bosser ce DEA !! Totalement schizophrène, partagé que je suis entre l'enseignement que j'inflige à mes étudiants de "classe prépa" et celui dont on m'illumine à l'Université, je ne parviens plus à disposer des cours nécessaires pour garder le cap. Emergent alors de la grisaille des polycopiés perdus, Laurent Deguillaume et Marie Monier. Ils me tendent des bras salvateurs chargés de photocopies - ô combien éclairantes - des cours auxquels je ne puis assister : grâce leur soit rendue, à eux et à Fanny Minvielle, mon phare souriant dans la nuit de ces premiers pas informatiques consacrés à la modélisation de l'aérosol du sous-continent Indien. Sans elle … point de DEA !

Octobre 1999 … "l'aéro … QUOI? Du sous-continent … QUI ?" …

Trop tard! Il n'est plus l'heure de poser des questions!! Face au gouffre insondable de mon incurie scientifique, celui qui va devenir mon mentor pour les (au moins) 7 années suivantes – 7 ans …tiens, ça me rappelle un film avec Marilyn … des images bien plus glamour que celles du terminal de la station de calcul … mais je m'égare … - n'a qu'une réponse "En avant" ! Cela s'appelle le destin.

Certains rencontrent un dieu, d'autres un piquet de ski, moi c'est Guy Cautenet. Heureusement que durant la dernière année de thèse je lui ai rendu au centuple (que Sylvie Cautenet me pardonne) tout ce qu'il m'a fait subir pendant cette thèse. Guy ne m'a rien épargné ! Contrepèteries (pourquoi croyez-vous que la thèse soit consacrée à l'aérosol en Chine ?), chansons anarchistes, repas pantagruéliques (merci Sylvie), colloques et congrès ici et ailleurs (ah ! EGU à Nice …), des heures consacrées à corriger mes divagations sous RAMS, la relecture (syllabique) de mes manuscrits, l'ingestion forcée de plaquettes de chocolat 80% cacao/20% stéroïdes anabolisants, des messes en latin … bref … l'enfer!

*Juin 2006 … j'en vois le bout! Mais je me vengerai!... d'ailleurs c'est décidé, tant qu'on ne m'expulse pas … je reste ! Guy, tiens le toi pour dit ! "*Tu aimeras ton prochain comme toi-même *… D'abord, Dieu ou pas, j'ai horreur qu'on me tutoie..." (Pierre Desproges / 1939-1988)*

Ces 6 années de bagne n'auraient pu être supportées sans le soutien sincère, loyal et tellement réconfortant des rameurs de fond de cale du LaMP. Certes, leurs noms sacrilèges ne doivent pas être prononcés … mais je transgresserai l'interdit pour leur rendre un hommage vibrant et affectueux. Que mes plus chaleureux sentiments accompagnent les âmes perdues de Christel B. (honneur aux dames), Fanny M. , Maud L., Karine D., Sandra B. (et toute l'équipe informatique du LaMP), Anne-Marie L., Jamal Y. (non c'est pas un dame ?), Joachim A. ("vas-y Jo!"), mon gars Laurent D. (encore ?), Gilles F., Pascal B., Mathieu L., Vincent G. et toutes celles et ceux qui construisent …des poussières … et de belles volutes dans le ciel.

Mon plus fraternel salut aux amis qui n'ont cessé d'entretenir les flambeaux des encouragements depuis les berges quand le port d'arrivée semblait s'éloigner jour après jour… Isabelle et Jean-Louis C., Marussia et Max H., Alexandra et Hervé S., Michelle et Bernard C., "Manu" B., "Jeff" M., Cécile M-G. et mon gars Laurent G. (un autre), et j'ai honte d'oublier nombre d'autres sémaphores amicaux, toutes mes excuses.

Je ne remercie aucun des ci-devants gouvernementaux par la faute de qui la rédaction de mon manuscrit fut dramatiquement retardée et la cause de nuits blanches, obligé que je fus ces derniers mois de manifester pour diverses causes de protections sociales et d'acquis républicains. " Toute une vie de vols effroyables, non plus à main armée, comme les nobles aventuriers de jadis, mais en correct bandit moderne, au clair soleil de la Bourse, dans la poche du pauvre monde crédule, parmi les effondrements et la mort." L'argent - Emile Zola / 1840-1902. Roger Parizot serait bien d'accord, la réalité du monde ne se comprend pas seulement par des modèles théoriques et étherés, elle se fabrique aussi dans la rue.

En revanche, ma gratitude est pleine et entière envers les membres de mon Jury de Thèse, MM. Bergametti, Despiau et Legrand, pour (i) leur mansuétude, (ii) leur contribution au fond scientifique, à la mise en forme de ce travail, ainsi qu'à la mise en lumière des corrections nécessaires et des futurs développements possibles. Encore Merci.

Tout ce travail repose sur un piédestal inébranlable et inamovible : ma famille que j'aime, grosses bises à toutes et tous, de mes derniers petits neveux à mes arrières grand-mères.

Avril 1997, Juin 2000, Mars, 2002 … Quentin, Roman, Jules, je l'avoue maintenant, ce manuscrit est aussi pour vous.

Novembre 1966 à ce jour … merci à mes parents, Violette et Jean-Louis Lasserre, dont je serais toujours infiniment plus fier qu'ils ne le sont de moi-même.

Eternellement …merci Anh-Thu.

Chapitre 1
Introduction
Les aérosols asiatiques: aperçu des études actuelles

1.1 Que sont les "aérosols " ?

1.1.1 - Un tour d'horizon des définitions
1.1.2 – Effets radiatifs des aérosols et des gaz
1.1.3 – Sources et classification des aérosols
1.1.4 – Distributions granulométriques

1.2 Cas particulier de l'aérosol atmosphérique "asiatique"

1.2.1 – La pollution attribuée aux gaz en Extrême Orient
1.2.2 – La participation des aérosols à la pollution en Asie orientale

1.3 Etat de la modélisation du transport d'aérosol désertique en Asie

1.3.1 – Les groupes de travail qui étudient l'aérosol minéral asiatique
1.3.2 – Les groupes de travail qui étudient l'aérosol de pollution anthropique asiatique

1.4 Objectifs de la thèse et articulation de l'ouvrage

Chapitre 2
Mise au point d'un cadastre d'émission éolienne d'aérosols désertiques destiné à des simulations méso-échelle

2.1 Le DPM de Marticorena-Bergametti

2.1.1 - Paramètrisation physique du modèle de soulèvement de poussières
2.1.2 – Applications du DPM MB95 au transport d'aérosol désertique en Afrique

- Vitesses seuil d'érosion
- Flux d'émission
- Concentrations massiques d'aérosols transportés
- Flux de dépôts de poussières minérales
- Chimie et mélanges
- Aspect radiatif : données de télédétection utiles aux validations des simulations et modèle radiatif approprié

2.2 L'adaptation du modèle MB à l'Asie du Nord-Est dans le cadre de cette thèse

2.2.1 – Cadastre spatio-temporel des types de sol en Chine et en Mongolie
- Panorama général : Sources et puits d'aérosols désertiques en Asie de l'Est
- Panorama général: variabilité climatologique des tempêtes de sable

2.2.2 – Principes de construction et éléments du cadastre d'émission éolienne
- Caractéristiques spatiales du cadastre
- Le cas particulier du paramètre d'érodabilité
- Principes du processus itératif de mise au point du cadastre d'émission

2.3 Les éléments des simulations RAMS

2.4 Eléments détaillés de la mise au point du cadastre sur la base des données d'Avril 1998

2.5 Mise en évidence d'épisodes de tempêtes de poussières à l'aide des visibilités observées aux stations.

Chapitre 3
Validation et application du cadastre d'émission éolienne d'aérosols désertiques: modélisations de transports de poussières issues de Chine et Mongolie

3.1 Validation de la source d'aérosol minéral

3.1.1 – Contexte de l'étude l'événement d'Avril 2002
3.1.2 – Objectifs atteints par l'étude de la simulation RAMS de l'événement d'Avril 2002
3.1.3 – Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China

3.2 Simulation du transport d'aérosol minéral pour un évènement de tempête survenu en avril/mai 2005

3.2.1 – Contexte et ressources en données de validation pour l'étude de l'événement du printemps 2005.
3.2.2 – Adaptation du cadastre et paramétrisation RAMS
3.2.3 – Confrontation d'ensemble des sorties du modèle aux données d'observation satellitaire
- Les flux d'émission dans les zones sources et les vents calculés
- Charges colonne en poussières minérales. Comparaison avec les images TOMS

3.2.4 – Confrontation des sorties du modèle aux données d'observation in-situ en deux villes en Chine et une ville au Japon appartenant à la zone simulée, du 27 avril au 02 mai 2005.
- Description des lieux de mesures in situ

- Un exemple de l'utilisation des indices de qualité de l'air sur les deux villes de Chine
- Cartes des simulations des concentrations de surface
- Résultats des simulations et observations in-situ à Hohhot (Chine) : concentrations volumiques, charges colonnes, profils verticaux et analyses Lidar
- Résultats des simulations et observations in-situ à Beijing (Chine) : concentrations volumiques, charges colonnes, profils verticaux et analyses Lidar
- Résultats des simulations et observations in-situ à Toyama (Japon) : concentrations volumiques, charges colonnes, profils verticaux et analyses Lidar

3.2.5 – Evolution de la granulométrie modélisée

3.3 Conclusion

Chapitre 4
Modélisation simultanée des aérosols désertiques et de polluants anthropiques en Asie orientale.

4.1 Les polluants anthropiques

4.1.1 - Les aérosols anthropiques retenus dans cette étude

4.1.1.a - *Les composés soufrés et leur prise en compte dans ce travail*

4.1.1.b - *Les Black Carbon et leur prise en compte dans ce travail*

4.1.2 - Analyse comparative de cadastres d'émissions de polluants anthropiques en Asie orientale

- Comparaison des cadastres d'émission de SO_2
- Comparaison des cadastres d'émission de BC

4.2 Simulation des transports des aérosols minéraux et de polluants anthropiques: BC et composés soufrés, au printemps 2005

4.2.1 - Champs horizontaux de concentrations d'aérosols minéraux et d'aérosols de pollution anthropique, et examen critique des valeurs modélisées.

4.2.2 - Historiques par espèce chimique des concentrations simulées sur les villes de Hohhot, Beijing et Toyama.

- Chronologie des concentrations de BC en surface et en charge colonne
- Chronologie des concentrations de SO_2 et de SO_4^{2-} en surface et en charge colonne

4.3 La capture du SO_2 par les poussières minérales

4.4 Les trois types de polluants anthropiques

4.5 Caractérisations radiatives des structures verticales des panaches de pollution

4.5.1 – Analyses des Indices d'Aérosol TOMS à la lumière des propriétés optiques des charges colonnes de polluants
4.5.2 – estimations des épaisseurs optiques des colonnes de polluants et comparaisons aux données optiques de terrain
- Principe de calcul des AOT
- validation des AOT issues du modèle à l'aide des données du réseau AERONET : AOT et exposant d'Angström

4.6 Les dépôts secs des différents polluants naturels et anthropiques

4.7 Conclusion

Chapitre 5
Conclusion générale et perspectives

5.1 Conclusions du présent travail

5.2 Perspectives

Annexe

Références bibliographiques

Chapitre 1
Introduction
Les aérosols asiatiques: aperçu des études actuelles

1.1 Que sont les "aérosols " ?

1.1.1 - Un tour d'horizon des définitions

Les aérosols sont, par définition, les particules solides ou liquides, en suspension dans l'atmosphère, c'est-à-dire présentant une vitesse de chute suffisamment faible pour que leur durée de résidence dans l'air, bien que très inférieure à celle de la plupart des gaz, les autorise à participer de façon sensible à la physico-chimie de l'atmosphère. Un catalogue exhaustif des aérosols doit prendre en compte, dans une perspective d'étude globale à l'échelle planétaire, toute une gamme de particules de diamètres compris entre quelques dizaines de nanomètres et quelques dizaines de micromètres

On peut ainsi, à la Prévert, recenser les aérosols minéraux directement produits aux niveaux des sols par l'activité agricole [Shen et al., 2005], l'activité minière [Tingle et al., 1993] ou produits plus "naturellement" par l'action éolienne sur les zones arides et semi-arides, catégorie d'aérosols qui sera partie essentielle du développement de la présente thèse. Les aérosols dits « anthropiques » ou « aérosols de pollution », sont dérivés de l'activité humaine urbaine et périurbaine au sens large. La liste de polluants anthropiques comprend les rejets industriels [Bernabé et al., 2005; Ahn and Lee, 2006], ceux créés par les moyens de locomotion terrestres [Harris and Maricq, 2001], par les modes de transports maritimes [Corbett and Fischbeck, 1997] et aériens [Gayet et al., 2004], par les types de chauffage basés sur des combustions d'éléments fossiles ou *fossile fuel* [Fujitani et al., 2004] produisant, entre autre, des suies carbonées (*black carbon*) urbaines [Novakov et al, 2003], les aérosols carbonés issus des feux de biomasse, par exemple de savanes [Kuhlbusch et al., 1996]. Terminons ce rapide inventaire non exhaustif par les aérosols marins produits par les mers et les océans, particules issues de l'évaporation [Katoshevski et al., 1999], des éclatements des vagues ou *bubbling* [Clark et al., 2003], ou encore produits des précipitations de gouttes d'eau de mer [Cheng et al., 1988] … sans oublier l'aérosol d'origine volcanique à l'impact climatique quantifiable [Antuña et al., 2002 ; Power et Mills, 2005].

On peut, bien sur, proposer d'autres classifications des aérosols , en relation avec leurs effets radiatifs, climatiques, sanitaires. On peut dans le même temps les distinguer en fonction de leurs tailles, de leurs modes de production, de leurs concentrations typiques et en fonction de leurs compositions chimiques.

1.1.2 – Effets radiatifs des aérosols et des gaz

Concernant l'effet de l'aérosol atmosphérique sur l'interaction bilan radiatif/climat, on distingue traditionnellement deux niveaux d'interférence entre le rayonnement et les particules en suspension : l'effet radiatif direct et l'effet radiatif indirect.

- L'effet radiatif direct :

C'est le terme générique attribué à l'effet des aérosols considérés comme autant d'obstacles au rayonnement solaire. Dans cette approche, on calcule la perturbation radiative (en $W.m^{-2}$) induite par l'interposition des aérosols entre la surface terrestre et océanique d'une part et les rayons solaires d'autre part. L'aérosol est le siège de processus d'absorption et de diffusion de l'énergie portée par les rayonnements UV, visibles et IR, et contribue dès lors aux évolutions météorologiques, voire climatiques selon les échelles de temps et d'espace considérées, par son influence sur le bilan radiatif de surface.

Les effets conjugués des aérosols et des gaz à effet de serre sont sujets d'études depuis quelques dizaines d'années. Les gaz à effet de serre initialement d'origines naturelles, essentiellement la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone CO_2, mais aussi d'autres gaz (dioxygène O_2, protoxyde d'azote N_2O, méthane CH_4, ozone O_3,…) ont contribué, par absorption de 95% du rayonnement tellurique infra rouge aux échelles de temps géologiques, à l'établissement de la température moyenne troposphérique actuelle d'environ 15°C [Gitay et al., 2002], température a laquelle nous autres humains avons adapté notre évolution. A première vue et en excluant les effets du réchauffement éventuel de la couche d'aérosol elle-même, l'effet radiatif direct, en tant que phénomène d'écran renforçant l'albédo global, aurait pour conséquence première de forcer un refroidissement de la surface terrestre.

On mesure depuis les années 1980-90 une tendance à l'augmentation de température globale [Vinnikov and Grody, 2003] résultant pour partie substantielle d'une augmentation de la production anthropique des gaz à effets de serre durant le XX^{e} siècle (rapport de l'Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC 2001 http://www.grida.no/climate/ipcc_tar/vol4/french/086.htm), gaz émis principalement dans

l'hémisphère Nord, en Europe, en Amérique du Nord et en Asie. La communauté scientifique, au vu des enjeux cruciaux liés aux changements climatiques, s'interroge de façon plus ou moins polémique sur les scénarios détaillés de ce processus, en particulier sur le rôle inhibant ou forçant des aérosols [Hansen et al, 2000], et s'inquiète de l'impact de polluants anthropiques tels que les *black carbon* [Hansen et al, 2000 ; Jacobson, 2002], les sulfates [Brasseur and Roeckner, 2005] ainsi que de divers précurseurs d'aérosols. Selon les scénarios et les modèles de climat utilisés [IPCC 2001, Résumé scientifique], en 2100, la température moyenne à la surface de la Terre augmenterait, en moyenne annuelle, de +1.4°C à +5.8°C (la référence étant 1990) ; or, cette tendance due aux gaz à effets de serre va à l'encontre de l'effet de « parasol » engendré par le seul effet direct des aérosols, et cet effet, estimé à -1.9 ± 0.3 $W.m^{-2}$ par Bellouin et al. [2005] ne saurait à lui seul s'opposer eu réchauffement de la surface terrestre.

- L'effet radiatif indirect :

On désigne par « effet indirect », l'ensemble des processus radiatifs résultant d'une rétroaction des particules atmosphériques déjà responsables de l'effet direct. Les aérosols – notamment les aérosols hydrophiles (sulfates, nitrates, chlorures …) - peuvent servir de noyaux de condensation (ou CCN, *Cloud Condensation Nuclei*) initiant la formation des nuages, de sorte qu'à contenu en eau fixé, un nuage issu d'une masse d'air d'avantage chargée en aérosols contient un nombre de gouttelettes supérieur au contenu d'un nuage moins pollué en aérosols. Des modèles d'effet indirect ont servi à déterminer les effets radiatifs de la diminution initiale de la taille des gouttelettes nuageuses. Bien que les gouttelettes soient plus petites, un tel nuage aura tendance à être plus réfléchissant [Twohy et al., 2005] que celui issu d'une masse d'air contenant moins d'aérosols. Cet effet d'augmentation de l'albedo nuageux est connu sous la dénomination de « premier type » d'effet indirect [Twomey, 1974]. Les résultats présentés à la *figure 1.1* donnent un avis autorisé quant à l'intervalle d'impact radiatif correspondant à cet effet « Twomey » et s'accordent qualitativement à le voir refroidir le système climatique.

On a également quantifié les effets de la diminution initiale de la taille des gouttelettes sur la diminution ultérieure de la capacité de précipitation des nuages (deuxième effet indirect, [Albrecht, 1989]) et donc sur l'allongement de la durée de vie du nuage, ainsi que sur l'épaisseur du nuage [Pincus and Baker, 1994]. Les incertitudes restent nombreuses sur les conséquences radiatives de cette longévité accrue des nuages. De façon encore très incertaine,

la perturbation radiative liée au deuxième effet indirect aurait un signe variant selon l'altitude du nuage et pourrait avoir la même ampleur que celle associée au premier effet.

Dans l'état actuel de nos connaissances – toutes relatives – des effets radiatifs cumulés direct et indirects de l'aérosol, la balance des avis penche plutôt pour de possibles résultantes localisées et temporelles qui seraient antagonistes à celles des gaz à effet de serre aux mêmes lieux et mêmes instants. Notons que le rapport 2001 de l''IPPC souligne le fait que les forçages moyens mondiaux positifs et négatifs ne peuvent être additionnés ni considérés a priori comme fournissant des effets compensatoires en termes de l'impact complet sur le climat mondial.

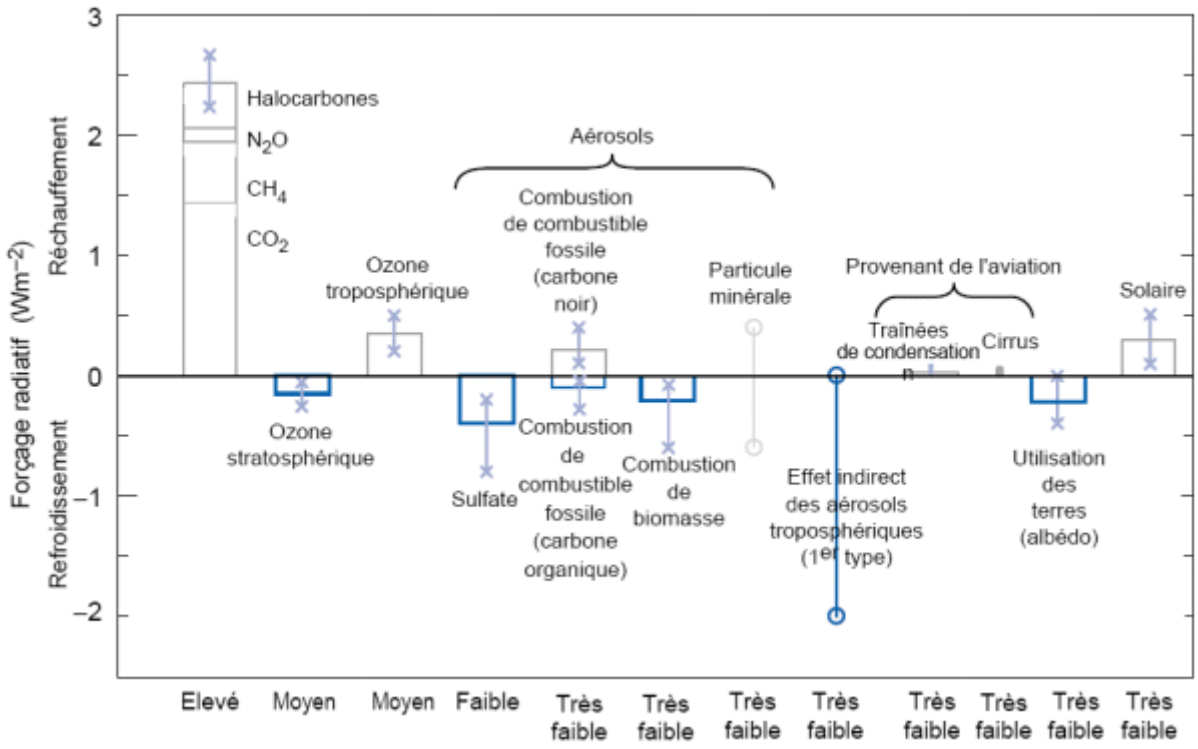


Figure 1.1 - Forçages radiatifs (Wm^{-2}) annuels moyens dans le monde, découlant d'un certain nombre d'agents de la période pré-industrielle (1750) au présent (fin des années 90; vers 2000). La hauteur de la barre rectangulaire indique une valeur centrale ou la meilleure estimation, son absence indique l'impossibilité d'obtenir la meilleure estimation. La ligne verticale dans les rectangles délimitée par des X indique un forçage pour lequel aucune estimation centrale n'est possible en raison d'incertitudes importantes. Une mesure subjective du "niveau de compréhension de la science", allant d'élevé à moyen, à faible et à très faible, est associée à chaque forçage. (Extrait du rapport IPCC 2001, Bilan 2001 des changements climatiques : Les éléments scientifiques)

1.1.3 – Sources et classification des aérosols

Le forçage radiatif des gaz à effet de serre est bien mieux estimé que celui des aérosols, entre autre parce que la diversité des acteurs principaux est bien plus restreinte, et, parce que leur temps de résidence atmosphérique est bien plus élevé que celui des aérosols et, par suite, leur densité globale plus homogène.

Il en va tout autrement des aérosols troposphériques énumérés en introduction de ce chapitre. Ceux-ci ont, en effet, un caractère très sporadique. D'une part, les sources naturelles ou anthropiques sont réparties de façon extrêmement hétérogène à la surface du globe tant géographiquement que temporellement, en dehors, exception notable en terme de masse produite, des sulfates océaniques [Masclet et Cachier, 1998]. D'autre part, ils sont déposés au sol ou « lessivés » par voie humide et/ou sèche sur des laps de temps allant de quelques heures à, au plus, une dizaine de jours.

Masclet et Cachier, [1998] répertorient quatre sources principales d'aérosols naturels :

- La source terrigène est la conséquence de l'érosion des sols arides ou fragmentés par l'activité agricole et exposés à l'action mécanique éolienne. Cet aérosol possède un cycle atmosphérique d'un rôle incontestable dans la chimie troposphérique en Asie comme le détaillent Zhang et Carmichael [1999]. La mise au point du cadastre d'émission « minérale » en Asie fera l'objet d'une partie du présent travail. Comme nous n'entrerons pas plus loin dans le détail de la composition minéralogique de cet aérosol, précisons qu'il est principalement constitué, de calcite (carbonate de calcium), d'oxydes métalliques (fer, manganèse) et d'aluminosilicates (oxydes d'aluminium et de silicium). Diverses études ont tenté de modéliser et quantifier la production et le transport des particules minérales atmosphériques à l'échelle globale [Tegen and Fung, 1994; Claquin, 1999; Ginoux et al., 2001; Woodward, 2001; Zender et al., 2003]. Ces études encadrent la production des poussières dans un intervalle de 500 à 5000 Mt/an.
- La source marine est constituée par les sels marins solides (chlorures, sodium, nitrates) produits de l'évaporation des gouttelettes d'eau du spray océanique. Cette source produit bien sûr des sulfates (*Sea Sulfates*) formés par oxydation du SO_2 lui-même produit de l'oxydation du diméthylsulfure (DMS) émis par les algues.

Au niveau global, ce type d'aérosol domine largement comme le rappellent Grini et al. [2002] en calculant une production annuelle globale estimée à 6500 Mt.

- La source volcanique constituée de métaux et de sulfates provenant de la conversion du SO_2 gazeux émis en abondance par les volcans. Cet aérosol est relativement marginal dans la troposphère. la production annuelle de SO_2 résultant de l'activité volcanique est estimée par Halmer et al. [2002] à 7.5-10.5 Mt/an.
- La source biogénique. Aérosol quasi exclusivement organique provenant d'une part de l'émission directe d'hydrocarbures lourds par la végétation et d'autre part de l'oxydation atmosphérique d'hydrocarbures biogéniques plus légers comme l'isoprène. L'émission annuelle d'isoprène est de l'ordre de 400 Mt/an [Bey et al., 2001].

L'aérosol de pollution inclus deux types de sources : une source dite « directe » formant des aérosols « primaires », et une source indirecte, de nature gazeuse à l'origine et produisant des aérosols dans un second temps. Les aérosols primaires produits directement représentent 20-30% de l'aérosol de pollution, les autres 70-80 % sont les produits indirects de nos rejets et sont alors des aérosols dits « secondaires » car ils sont pour la plupart issus de mécanismes de conversions gaz→particule.

La source d'aérosol de pollution met en œuvre une chimie complexe, cumulant des aspects de chimie hétérogène et de photochimie dont la prise en compte des aspects tridimensionnels peut induire des biais dans les résultats des potentiels oxydants des espèces gazeuses [Bouet et al, 2006]. Par exemple, en milieu pollué par du monoxyde d'azote NO et par du SO_2, l'aérosol sera le support matériel de la formation photochimique des sulfates issus du SO_2 gazeux. Mais dans le même temps, le radical $OH\cdot$, catalyseur du processus $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$, catalysera aussi la photolyse de NO_2 (issu de NO), intermédiaire réactionnel de la synthèse de l'ozone O_3. L'aérosol de pollution peut aboutir ainsi à ce qu'on appelle, dans les médias, une « pollution par l'ozone ».

Une cartographie détaillée des sources de polluants est nécessaire aux modèles climatiques employés par la communauté scientifique. Des bilans moyens annuels d'émission donnent un ordre d'idée des quantités produites, mais, en particulier pour des modèles de simulation locaux ou méso-échelles, il sera indispensable de disposer d'une spatialisation plus fine de ces sources et d'indications des saisonnalités éventuelles. Différentes équipes de recherche et de nombreux organismes s'emploient à référencer les sources de l'aérosol de

pollution. Nous nous éloignerions trop de notre sujet s'il fallait en présenter ici une liste détaillée à l'échelle du globe. Précisons qu'au niveau mondial, l'IPCC s'efforce de produire une synthèse opérante de ces études et qu'en ce qui concerne la présente thèse nous développerons précisément le moment venu les sources employées dans nos simulations informatiques à méso échelle.

1.1.4 – Distributions granulométriques

En tant que puit ou source de polluants urbains, l'aérosol aura un effet sanitaire sensible si sa taille et sa forme lui permettent de pénétrer à l'intérieur des voies respiratoires. L'aérosol est dit « respirable » s'il est de diamètre aérodynamique inférieur à 2.5 µm ($PM_{2.5}$). Strand et al. [2006] établissent, par exemple, le caractère nocif des aérosols primaires sulfatés de diamètres inférieurs à 2.5 µm, en particulier auprès des enfants asthmatiques. Ce critère de taille est un élément supplémentaire de classification des aérosols. La taille des aérosols s'étend du centième de micron à quelques dizaines de microns. Au-delà de l'impact sanitaire, plus la taille d'un aérosol est importante, plus son temps de résidence dans l'atmosphère est court, car il sera d'autant plus sensible à la sédimentation gravitationnelle.

La distribution en tailles des aérosols, c'est-à-dire le spectre continu de la population N de particules de diamètre aérodynamique moyen D_p présente un certain nombre de maxima dénommés "modes". Masclet et Cachier, [1998], répartissent les aérosols en deux modes (*figure 1.2*) lognormaux aux niveaux des sources et distinguent de ce fait les aérosols de pollutions, d'un ordre de taille du dixième de micron, des aérosols naturels de tailles supérieures au micron.

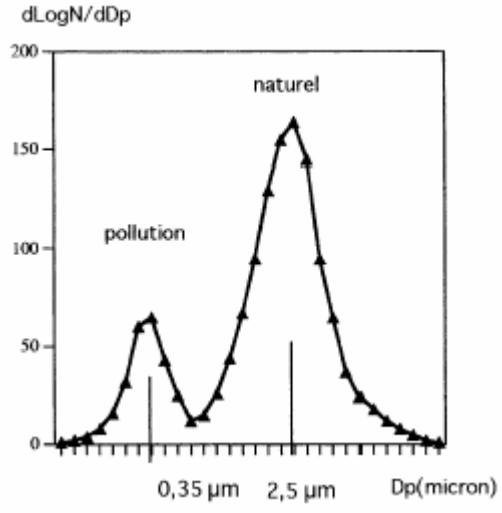


Figure 1.2 – Distribution granulométrique de l'aérosol atmosphérique, d'après Masclet et Cachier, [1998].

De façon générale, la distribution en taille (et en masse) dépend très fortement du type d'aérosol considéré et de la distance à sa source primaire. Selon la proximité ou l'éloignement de cette source et en fonction de processus physico-chimique de transformations (ou "vieillissement", *aging* en anglais) qu'aura pu subir l'aérosol durant son transport, sa distribution en taille pourra présenter 1, 2, voire 3 modes spectraux. Ces modes sont référencés selon 3 classes dont les bornes ne sont pas strictement arrêtées par la littérature:

- Le mode fin (ou *mode d'Aitken*, ou encore *mode Nucléation*), correspond à des particules de diamètre inférieur à environ 0.1 µm, le plus souvent issues de conversion gaz → particule. Ces particules sont optiquement peu actives.
- Le mode *Accumulation*, pour lequel D_p est compris entre 0.1 µm et 1 à 2 µm. La désignation de ce mode renvoie aux processus mécaniques et chimiques de coagulation qui aboutissent à leur formation. Leur dimension propre est de l'ordre de grandeur de leur libre parcours moyen, distance sous laquelle les particules accroissent considérablement leur probabilité de collision entre elles et donc leur propension à s'agglutiner les unes aux autres.
- Le mode *Grosses Particules* (ou "*Grossier*" de *Coarse mode* en anglais), contient les aérosols de diamètre supérieur à 1 ou 2 µm. C'est le cas d'une partie notable des aérosols naturels marins et terrigènes. Le mode est qualifié de "*Grossier*" non par connotation péjorative mais parce que sa taille est supérieure à celle des autres modes et parce que la forme des aérosols dans ce mode s'éloigne du modèle sphérique.

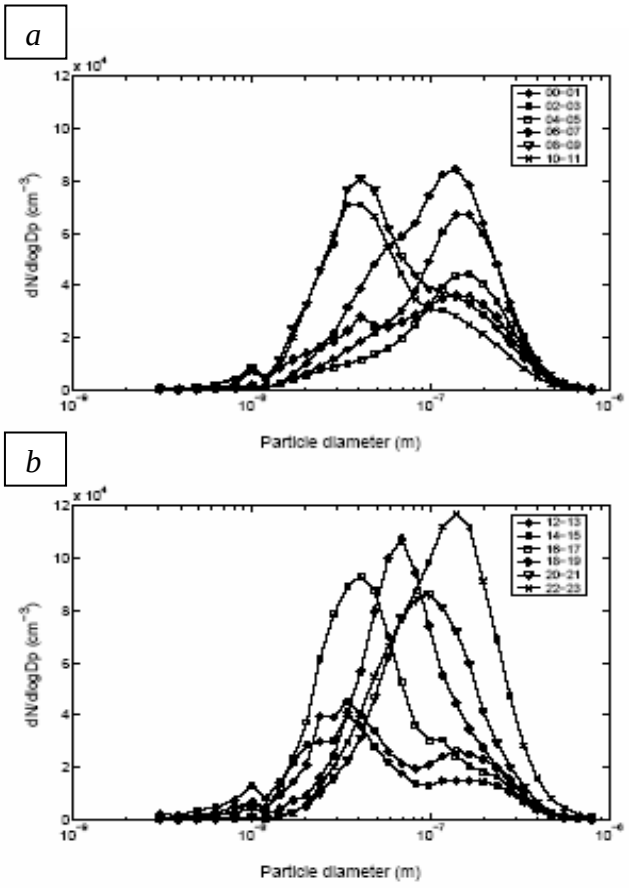


Figure 1.3 – Distribution granulométrique de l'aérosol atmosphérique à New Delhi le 28 octobre 2002, d'après Mönkönnen et al., [2002]. Evolution moyennée sur une heure de la distribution en taille. (a) montre la situation matinale, (b) : évolution dans la deuxième partie de journée.

Aucun type d'aérosol ne se conforme strictement à un mode, tout au plus retrouve-t-on des distributions en taille plus ou moins systématiques. Par exemple, les aérosols biogéniques sont des aérosols primaires qui sont produits sur un large éventail de dimensions particulaires (0.30 - 50.0µm). Les pollens, les spores, les résidus d'usine sont généralement distribués sur le mode grossier. Les bactéries, algues, protozoaires et les virus seront plus petits et tomberont dans le mode Accumulation. De même, les aérosols primaires produits par combustion (par exemple lors de brûlage de biomasse) sont répartis sur les trois modes granulométriques. De très nombreuses particules d'aérosol dans le mode Nucléation sont composées des composés sulfuriques, mais ces particules d'aérosol de sulfate sont aussi très mobiles et sujette à la coagulation : une grande partie de l'aérosol de sulfate produit évolue en définitive sur le mode Accumulation de 0.1 à 1.0 µm. Mönkkönen et al.[2004] constatent que les polluants urbains à New Delhi (Inde) se transforment durant une journée d'automne et évoluent, en nombre, du mode de Nucléation vers le mode Accumulation (*figure 1.3*). De même, Zhang et al., [2004] ont montré l'extrême diversité, et la variabilité horaire, des tailles d'aérosol en bordure d'autoroute à proximité de Los Angeles (USA).

Ces modes de répartitions granulométriques sont redistribués par les modes de transports verticaux comme le montrent Zazen et al., [2004] à partir de mesures d'aérosols transportés sur de longues distances en Février 2000 au-dessus de l'Océan Pacifique. A 11 km d'altitude, l'aérosol est monomodal et compris essentiellement entre 0.01 et 0.1 µm.

La *figure* 1.4 de Shaefer et Day, [1997] illustre quelques domaines de taille représentatifs d'aérosols pris en compte dans les discussions de notre travail.

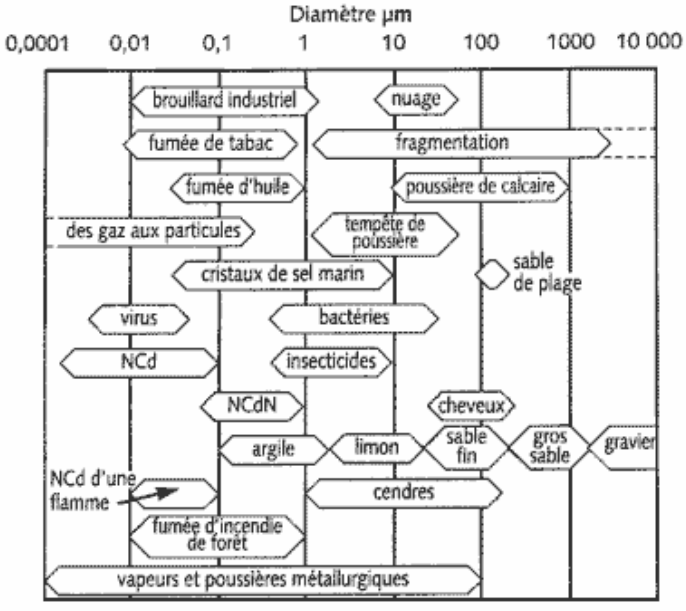


Figure 1.4 – Classes de tailles indicatives pour différents aérosols. NdC : Noyaux de Condensation ; NCdN : Noyaux de Condensation des Nuages (aussi noté CCN pour Cloud Condensation Nuclei) [Schaefer et Day, 1997].

Bien que la concentration en nombre des aérosols en mode de nucléation soit importante, ils constituent une fraction faible de la masse globale d'aérosol. On doit donc distinguer la distribution des aérosols « en masse » de la distribution « en nombre ». En comparant la physico-chimie et la minéralogie des sédiments déposés par temps clair avec ceux transportés par des tempêtes à Yinchuan (Nord de la Chine), Liu et al., [2004] étudièrent à la fois les modes de distribution en nombre et en masse. Le *tableau 1.I* résume les résultats publiés et montre qu'en particulier par temps clair, à une distribution monomodale en nombre a correspondu une dispersion trimodale en masse.

Distributions des diamètres géométriques moyens (en µm)	par temps clair (bruit de fond de pollution)	après épisode de tempête de sable
en nombre	monomodale : 0.64-0.84	monomodale : 1.1
en masse	trimodale : 0.67, 3.0, 7.7	monomodale : 3.09

Tableau 1.I – Modes de répartition des diamètres géométriques moyens des poussières sédimentées à Yinchuan. Analyses des répartitions en nombre et en masse selon les conditions atmosphériques, d'après Liu et al., [2004].

Dans le cas de poussières désertiques, certaines particules s'inscrivent dans un mode grossier autour de dimensions extrêmement élevées : 88-125 µm entre 2.5% et 9.2% en masse d'après les calculs de Draxler et al., [2001] relatifs aux tempêtes en Irak-Koweit-Arabie Saoudite.

Les particules minérales issues du continent Nord asiatique feront tout spécialement l'objet d'une analyse approfondie dans notre travail de thèse.

1.2 Cas particulier de l'aérosol atmosphérique "asiatique"

Pour essayer de situer le contexte du problème de l'aérosol asiatique et de se faire une idée de son devenir, il est nécessaire de présenter tout d'abord l'évolution de la pollution gazeuse, qui, d'une part, lui est intimement liée, et qui est, d'autre part, historiquement mieux documentée.

1.2.1 – La pollution attribuée aux gaz en Extrême Orient

De 1950 à 1986, la somme cumulée du CO_2 émis par les Etats-Unis, le Japon, l'Allemagne fédérale, la France et l'Italie représentait 45.9% du total mondial. Les populations additionnées de ces pays ne représentent que 10.6% de la population mondiale. Durant la même période la Chine et l'Inde, ensemble, ont émis 8.8% du total mondial de CO_2 alors que ces deux pays totalisent 37.3% de la population du globe et sont parmi les pays les plus industrialisés des pays émergeants. Les pays en développement industriel accroissent leur consommation de combustibles fossiles et donc leurs émissions de CO_2. Mais les pays riches de l'hémisphère Nord s'alarment – un peu tard – de cet apport de gaz à effets de serre : les capacités d'absorption de l'atmosphère ont déjà été épuisées par le Nord. *"Si tous les citoyens de cette Terre émettaient autant de CO_2 que les Allemands, l'humanité aurait besoin de cinq planètes Terre pour que la Nature puisse digérer ces rejets gazeux."* **(***Zukunftsfähiges Deutschland*, Studie des Wuppertal Instituts für Klima, Umwelt, Energie, 1996).

L'exemple de la Chine sert à argumenter de façon convaincante ce point de vue. Elle était déjà en 1997 le troisième plus grand émetteur de CO_2 après les Etats-Unis et la Russie. Mais par tête d'habitant elle émettait encore presque 8 fois moins que le Canada et les Etats-Unis. Or sa production est promise à croître avec l'industrialisation rapide qu'elle connaît, et ce d'autant plus qu'elle brûle les combustibles fossiles d'une manière particulièrement peu économe par unité de valeur produite, et qu'elle dispose de réserves massives de charbon qu'elle compte bien exploiter. La revue Actu-Environnement (http://www.actu-environnement.com/ae/news/521.php4) rappelle que "Selon les experts participant à un forum du Programme des nations unies sur l'environnement (PNUE) réunissant des représentants de quelque 150 pays sur l'île sud-coréenne de Cheju (aussi orthographiée Jeju), des tempêtes de sable chargées de polluants toxiques soufflent de l'Asie du nord-est jusqu'à la côte ouest des Etats-Unis, contribuant à une mondialisation des problèmes d'environnement

avec une fréquence 5 fois plus importante qu'il y a 50 ans". Au début des années 1990, la production d'agents polluants qui affectent la couche d'ozone aux Etats-Unis, par exemple, était de 520.000 millions de tonnes (fluides frigorigènes, bombes à raser, bombe de laque à cheveux etc). Toute cette masse représente 37.7 % de la production mondiale de chlorofluorocarbones *CFC*. La Chine et les pays sous-développés n'en produisent que 2.9 % (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation, CSIRO, 1994) mais on s'alarme aujourd'hui d'une possible croissance des émissions de polluants gazeux par ce pays-continent dans les années à venir.

1.2.2 – La participation des aérosols à la pollution en Asie orientale

Dans la prise de conscience générale de la nécessité de lutter contre l'effet de serre d'origine anthropique, le rôle de l'aérosol asiatique dans le bilan radiatif terrestre et ses implications climatiques doivent être quantifiés. Cependant, ses effets climatiques à grande échelle, le plus souvent couplés aux cycles océaniques, sont contraints, comme les effets des gaz, à de fortes inerties.

A court et moyen terme les effets des aérosols asiatiques sont plus du ressort de la pollution pure, dans l'acceptation commune du terme, la "pollution" perceptible au quotidien. En 2001, la Banque Mondiale a signalé que 16 des 30 villes les plus polluées au monde étaient des métropoles chimoises, et en 2002, presque deux-tiers des villes chinoises prises en compte ne satisfaisaient pas aux normes fixées par l'Organisation Mondiale de la Santé en ce qui concerne les niveaux de particules en suspension dans l'air, à savoir les allergènes respiratoires et pulmonaires. Guo et al.[2004] proposent un inventaire des mélanges de métaux dans les composés organiques solubles à Qingdao (Chine) après une tempête de sable du printemps 2002 et distinguent les éléments constitutifs des minéraux des polluants anthropiques urbains comme le zinc et le plomb. En prenant l'exemple du plomb à Beijing (Pékin), en plus des émission primaires industrielles, des émission des véhicules à moteur, de la combustion de charbon, l'apport de poussières transportées sur de longues distances ainsi que celles remises en suspension et contenant des dépôts d'essence plombée précédemment émise, ont pu être les sources importantes de Pb sur cette ville [Sun et al., 2006]. Un panorama des mélanges possibles a été établi à propos d'épisodes de tempêtes survenus à Beijing au printemps 2002. Il s'avère que les tempêtes de sable, non seulement transportent d'importantes quantités de poussières minérales, mais aussi des quantités significatives de polluants [Sun et al., 2005]. De façon logique, on constate que les éléments déterminants de la

composition chimique finale des aérosols de tempêtes sont d'une part la région d'origine des sables et d'autre part le chemin qu'ils suivent pendant leur transport atmosphérique. Sun et al., [2005] précisent que le rapport Ca/Al peut servir d'indicateur de zone source au regard de la différence de teneur en Calcium existant entre celles-ci. Ils relèvent de plus que les polluants détectés étaient soit directement dans le sable (Zinc) soit le résultat d'un mélange avec l'aérosol de pollution durant le transport (Arsenic, Plomb), soit encore la remise en suspension de poussières déjà polluées (Soufre) ou bien produits de réactions à la surface des aérosols minéraux. Les tempêtes de sable chargées de polluants toxiques et transportées de l'Asie du nord-est jusqu'à la côte ouest des Etats-Unis déposent des métaux lourds et autres polluants venus de Chine et seraient responsables, selon les scientifiques [Husar et al., 2001], de dysfonctionnement des communications, de troubles respiratoires chez les enfants et les personnes âgées, et de pertes affectant le bétail et les céréales.

Notre propos ne sera pas d'étudier les polluants primaires autres que les poussières minérales issus des tempêtes de sable. En revanche, lorsque celle-ci croisent sur leurs trajectoires les polluants anthropiques comme le SO_2 et les BC, ils interagissent les uns avec les autres et peuvent potentiellement s'enrichir de leurs compositions mutuelles, c'est pourquoi nous chercherons à participer à la quantification de ces mélanges sans préjuger de la réalité controversée de la notion de "tempête polluante". Pour donner quelques ordres de grandeur, citons Sun et al. [2004] qui calculent, à la suite de leurs mesures à Beijing en 2002 et 2003, que les contributions en aérosols minéraux provenant des zones extra-urbaines représentent respectivement 79% et 37% du total des PM_{10} et $PM_{2.5}$ minéraux en hiver, et 19% et 20% en été par temps calmes. Durant une tempête de sable, ces proportions atteignent 97% des TSP, dont 79% des PM_{10} et 76% des $PM_{2.5}$.

Une climatologie rapide des tempêtes dites "de sable jaune" (*Kosa*) nous apprend que le phénomène survient sur les métropoles comme conséquence des tempêtes dans les déserts du nord-ouest de la Chine, habituellement pendant la période sèche du printemps, du fait de la forte convection issue de la rencontre de courants d'airs chauds et froids qui soulèvent les particules du sol vers de hautes altitudes. Une période de sécheresse durant les années 1999-2001 a renforcé ces effets [Gao et al., 2003]. Ainsi, des températures de sol plus élevées, soumises à de fréquentes arrivées d'air froid provenant par exemple de Sibérie ou de Mongolie, créent une stratification atmosphérique instable, menant de ce fait à plus d’épisodes de vent intenses et donc à plus de soulèvements de poussières désertiques. Les

aérosols minéraux soulevés par ces fronts froids atteignent jusqu'à 3 à 5 km d'altitude. Dans certains cas de poussières issues du Nord Ouest de la Chine [Aoki et al., 2005], celles-ci peuvent être redistribués tous azimuts ou bien, et plus généralement, être balayés vers l'est par des vents synoptiques, traversant la mer Jaune et atteignant la Corée en deux ou trois jours.

Pour clore ce rapide tour d'horizon situant l'intérêt que prendra une étude de l'impact de l'aérosol minéral/anthropique sur le continent Est-Asiatique, rappelons que les pluies acides qui proviennent des usines chinoises, couplées aux tempêtes de sable, sont l'objet de sérieuses préoccupations d'ordre sanitaire et environnemental en Corée et au Japon [Tsukuda et al., 2005] compte tenu du fait que ces poussières transportent de dangereux polluants. Ma et al., [2005], ont analysé les traces de Vanadium, de Chrome, de cuivre, etc, collectés sur la cote Ouest du Japon au mois de Mars 2002 et fournissent les distributions en nombre et en masse des polluants transportés par une tempête de sable originaire de Chine. En avril 2002, la Corée du Sud avait souffert de ce phénomène climatique de sable jaune pendant une durée de 15 jours, soit la plus longue période depuis 40 ans, et avait atteint un niveau deux fois supérieur au seuil de dangerosité pour la santé selon les normes de l'OMS. En Chine, le nuage a touché 70 millions de personnes dans le nord du pays, où la visibilité a parfois été réduite à 100 m.

1.3 Etat de la modélisation du transport d'aérosol désertique en Asie

Le présent travail s'inscrit dans l'effort de la communauté scientifique spécialisée dans les modèles informatiques de la troposphère, incluant par là les aspects mécaniques, radiatifs et chimiques des transports d'aérosols. Comme nous focalisons notre étude sur les aérosols minéraux asiatiques ainsi que sur certains polluants anthropiques, notre approche recoupe la thématique de travaux menés par ailleurs par des équipes de recherches à dominantes chinoises, coréennes et japonaises. Des équipes canadiennes et américaines sont également impliquées dans ce domaine de modélisation. Le but de ce paragraphe est de dresser un tour d'horizon, très probablement non exhaustif, des intervenants dans notre problématique afin de préciser l'état de l'art de la discipline, et de voir dans quelle mesure nous pouvons apporter notre pierre à l'édifice en construisant des compétences dans le domaine.

1.3.1 – Les groupes de travail qui étudient l'aérosol minéral asiatique

Ces équipes ont constitué une plateforme d'échanges intitulée DMIP (Dust Model Inter-commParison : http://cfors.riam.kyushu-u.ac.jp/~cfors/DMIP_Beijing/) . Ce forum met en œuvre 8 approches modélisatrices de deux événements de tempêtes de sables sévères et suffisamment bien renseignées pour les confronter quantitativement aux produits des simulations : ces deux tempêtes (sur les périodes du 15 au 20 mars et du 04 au 14 avril 2002) furent en outre caractérisées par des extensions géographiques recouvrant à la fois Chine, Corée et Japon. Les *tableaux 1.II* reprennent la synthèse comparative des modèles employés effectuée par I. Uno (voir Uno et al.,[2004] pour sa méthode appliquée à l'expérience ACE-Asia), coordonnateur de ce forum (Itsushi Uno, Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga Park 6-1, Kasuga, Fukuoka 816-8580, Japan). Nous avons inséré en comparaison nos propres paramètres, en parallèle en particulier avec ceux de l'équipe Uno du CFORS, car ils utilisent à la base, comme nous, le code RAMS dont nous donnerons plus de détail au chapitre 2.3.

La lecture des résumés des publications individuelles des partenaires de cette expérience d'inter comparaison laisse souvent penser que chaque modèle atteint ses objectifs. Cependant, comme le remarque Uno avec nous, l'analyse des détails des produits de simulations montrent d'importantes disparités de résultats. Sans chercher à mettre en concurrence les modèles, la comparaison a pour but de créer une synergie aboutissant au meilleur consensus possible, et c'est à ce titre que nous participons indirectement à ces comparaisons de modèles - confrontations aux mesures de terrain … pour ce qui concerne les tempêtes de 2002.

- Le DMIP concluait en 2004 que les différents modèles employés obtenaient des distributions similaires de poussières quant à leur distribution géographique mais que les quantités simulées de concentrations pouvaient être localement sans commune mesure les unes avec les autres. Les résultats des groupes travaillant à fine résolution spatiale (typiquement à moins de 50 km ou ½ ° de maille horizontale) donnent des concentrations élevées en de nombreux points de grilles alors que les groupes utilisant des mailles plus larges obtiennent des concentrations moins élevées et plus lissées spatialement (*figure 1.5*). Dans le désert du Taklamakan (Ouest de la Chine) certaines moyennes de concentrations calculées variaient selon les modèles entre 27 et 1600 $\mu g.m^{-3}$!

	LaMP	CFORS (Uno et al.)	COAMPS (US Navy)	iCOD/DREAM	Naval Research Laboratory, Monterey
Meteorological data base or model	RAMS	RAMS (with ECMWF or NCEP data)	COAMPS (with NOGAPS for boundary and initial)	NCEP/Eta (with NCEP data)	NOGAPS (global model)
threshold velocity or friction velocity	ustar**3 (Marticorena et bergametti, 1995)	ustar^^4 (Gillette and Passi, 1988)	ustar^^4 (Nickling and Gillies 1993)	ustar^^3[1-(ustar_t/ustar)^^2] (Shao et al., 1993)	ustar^^4 (Westphal et al., 1987, 1988)
dust size range	diameters between 0,2 - 26 µm	diameters between 0.2 - 40 µm	diameters 0.05 to 36 um	diameters between 1.46 - 76 um	radius of 1 um
dust size bins	20 bins	12 bins	10 bins	4 bins	1 bin
snow cover	raw projection of a single NOAA-snow cover-day included in the model	function of observed monthly averaged snow cover fraction (1 deg)	USGS landuse 1-km database	not considered	Forecasted by NOGAPS
soil wetness	function of soil wetness by RAMS LEAF2 soil model	function of soil wetness by RAMS LEAF2 soil model	N/A	soil wetness scheme by NCEP/Eta OSU soil model	Forecasted by NOGAPS
drag effects	included	drag partition is not included	N/A	drag partition is not included	None
treatment of vegetation	USGS landuse 1-km database	NDVI monthly data & threshold of ustar is a function of NDVI	USGS landuse 1-km database	None	Static field with seasonal dependence
Dry deposition	included	constant vale (different in each size bins)	function of wind stress (Stull 1988)	Giorgi (1986) model that includes turbulent and Brownian diffusion, gravitation setlement, interception and impaction; size and soil cover dependent	Walcek, et al., Atm. Env. 1986; Slinn and Slinn, Atm. Env. 1980
Wet deposition	included	function of surface precipitation rate (for each size bin)	function of stable and concective precipitation (Pruppacher and Klett 1978)	function of surface precipitation rate constant for bins	function of surface precipitation rate
Gravitational settling	included	Yes	terminal velocity (Seinfeld 1986)	Yes	Yes
Name of model	RAMS Version 4.3.0	RAMS Version 4.3	COAMPS	NCEP/Eta	NOGAPS (global model)
Boundary condition	ECMWF (1 x 1 deg, 6 hour interval)	ECMWF (1 × 1 deg, 6 hour interval) or NCEP (2.5 × 2.5 deg 6 hour interval)	NOGAPS (1 × 1 deg, 6 hour interval boundary)	NCEP (1.25 × 1.25 deg thinned octant grib domains; 6 hour interval)	NOGAPS

Tableau 1.II.a – Tableau récapitulatif des modèles employés par le groupe DMIP, d'après Uno I. (http://www.dar.csiro.au/pollution/docs/IUno_files/frame.htm#slide0002.htm). Les caractéristiques correspondantes de notre modèle sont insérées dans la colonne supplémentaire « LaMP ».

	NARCM (Gong et al.)	MASINGAR (MRI/JMA)	HCM (Chun et al.)	UNSW (Shao, Jung, et al.)
Meteorological data base or model	RCM (Canadian Regional Climate Model with NCEP data)	MRI/JMA 98 GCM (with JMA GANAL)	RDAPS(Regional Data-Assimilation and Prediction System/KMA)	T213 forecast or NCEP reanalysis
threshold velocity or friction velocity	ustar^^3 (Marticorena and Bergametti, 1995)	Shao et al. (1996); u^t is calculated by Shao and Lu (2000)	Ustar ^^4 (Westphal,1988) + Modified (In and Park, 2003)	Shao (2001); u^t is calculated by Shao and Lu (2000)
dust size range	diameters between 0.1 - 40.96 um	Diameters between 0.2 – 20 μm	diameters between 0.2 - 74 um	Contineous to any size. Mostly upto 40 um
dust size bins	12 bins	10 bins	11 bins	Any. Usually 6 bins
snow cover	function of observed monthly averaged snow cover fraction (1 deg)	Output of the land surface model (SiB)	not included	Not considered
soil wetness	CLASS (Canadian Land Surface Scheme (Verseghy, 1991)	Output of the land surface model (SiB); Applied to the threshold friction velocity with Fécan et al. (1999)'s method.	not included	Land surface model ALSIS
drag effects	drag partition is included	Drag effect by vegetation is considered by reducing dust emission flux proportional to the Leaf Area Index.	not included	Drag partitioning scheme based on Raupach (1992)
treatment of vegetation	threshold of ustar is a function of vegetation	Vegetation cover fraction and LAI are taken from the land surface model (SiB). Dust emission flux is reduced proportionally to the vegetation cover fraction.	USGS vegetation data / Dust emission reduction	NDVI included. Threshold friction velocity a function of vegetation cover
Dry deposition	Resistance approach (Zhang et al. 2001), size depedent.	Resistance-in-series model (Seinfeld and Pandis, 1997)	inferential method (Wesely et al., 1985; Wesely, 1989)	Dry deposition scheme
Wet deposition	In-could and below-cloud processes	Giorgi and Chameides (1986)	RADM	Wet deposition in cloud scheme
Gravitational settling	Yes	Yes	Yes	Part of dry deposition velocity
Name of model	RCM (Canadian Regional Climate Model)	MRI/JMA 98 GCM (with JMA GANAL)	RDAPS(Regional Data-Assimilation and Prediction System/KMA)	CEMSYS4
Boundary condition	ECMWF (1 × 1 deg, 6 hour interval) or NCEP (2.5 × 2.5 deg 6 hour interval)	JMA GANAL (1.25 × 1.25 deg, 6 hour interval) or NCEP (2.5 × 2.5 deg 6 hour interval)	GDAPS(Global Data-Assimilation and Prediction System/KMA), (0.5625 × 0.5625 deg, 12 hour interval)	T213 forecast; 6 hourly input; or NCEP (2.5x2.5) data with 6 hourly intervals

Tableau 1.II.b – Suite du Tableau 1.I.a.

- Les flux d'émission apparaissent n'avoir d'autre corrélation que leur correspondance temporelle. Par exemple, les flux issus du désert du Taklamakan varient d'un facteur 250 selon les modèles. Pour le désert de Gobi, les flux extrêmes différent d'un facteur 170 : entre $8.9.10^{-4}$ $mg.m^{-2}.s^{-1}$ pour le modèle le moins « productif » et 0.15 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ pour le modèle le plus « productif » de poussières minérales.
- Les flux de dépôt d'aérosols par voies sèches et humides présentent également des différences sensibles (un facteur 300 pour le dépôt sec selon le modèle retenu).
- L'étude de la redistribution verticale des aérosols, comparée aux données Lidar, ne permettait pas – selon l'auteur - de conclure de façon définitive à la meilleure représentation d'une approche par rapport à une autre, entre une injection d'aérosols pré mélangés dans la couche limite (méthode de 2 des 8 modèles) prescrite sans lien avec le vent, et une modélisation plus physique dépendant directement du vent de surface.

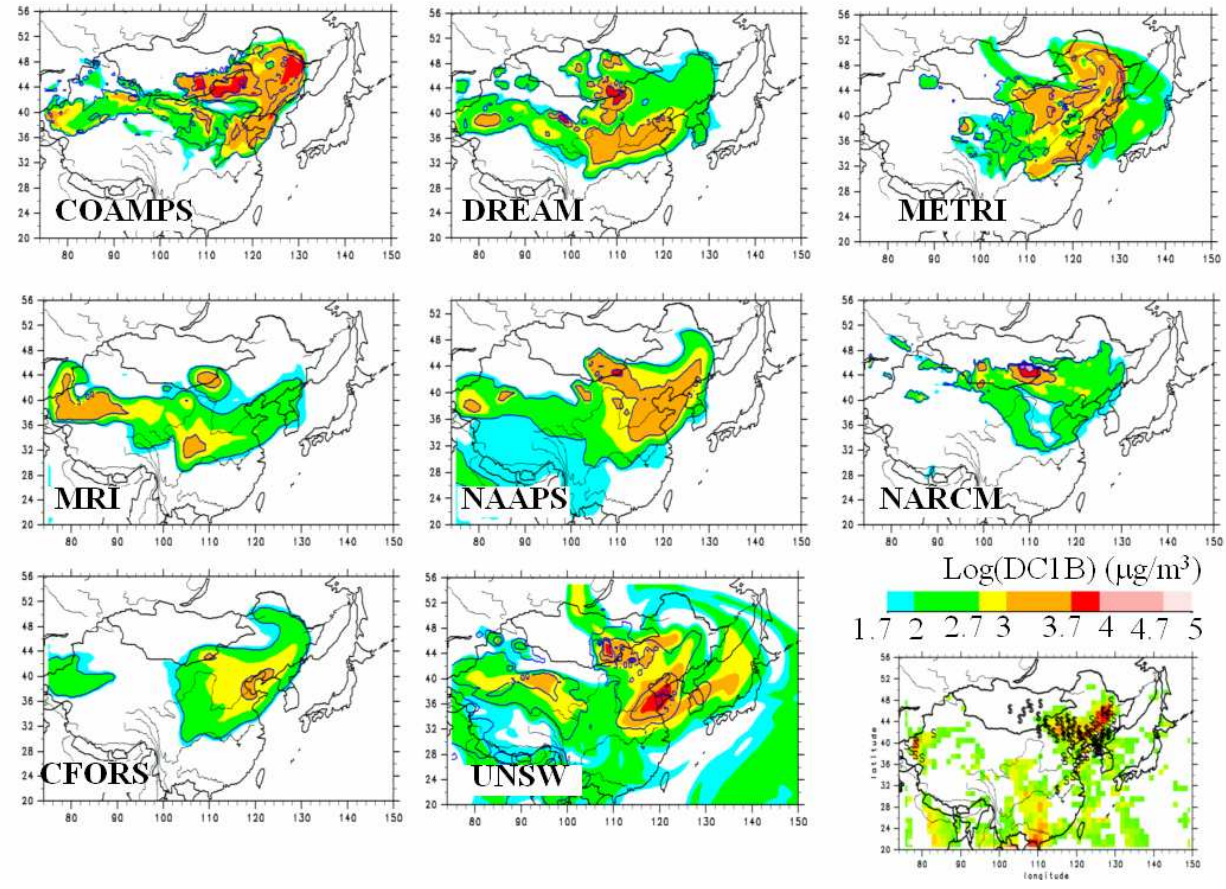


Figure 1.5- exemple de champs de concentrations en poussières minérales (en échelles logarithmiques) obtenues pour la date du 07 avril 2002. L'image TOMS correspondante en bas à droite sert d'étalon de comparaison.

Le DMIP concluait ses travaux en 2004 par les remarques suivantes :

1) *Dust concentration shows a dramatic difference !!! It is a kind of tragedy?*
2) *Accuracy of Meteorological Model. I was surprised at the difference in wind field in Tarim. The difference in Mongolia and Beijing is small. So the meteorological model performance over the complicated topography is very important (Have to use the accurate meteor. model !!!)*
3) *Source region allocation (Gobi, Mongolia and NE Inner Mongolia). Land use category does not agree among dust models. Importance of Taklamakan desert is not well recognized (highly model dependent). Measurements of dust flux and land use data are important in these regions.*
4) *Dust Emission Flux and deposition rate. (huge emission/huge removal group and moderate emission/moderate removal group) Why ?*
5) *Complicated dust model is not always provide the best results ??? We need PM_{10} measurement for more comparison*
6) *Horizontal resolution may not be a big issue. Accurate meteor. Field is more important.*

Cette expertise repose sur l'étude de deux cas représentatifs de tempêtes de sable relativement importantes. Elle a l'immense mérite de comparer les performances des modèles entre eux et de les confronter aux mesures in-situ. Elle ne peut cependant prétendre à une représentativité universelle de ce type de phénomène. D'autres études de cas sont proposées dans la littérature afin de valider les modèles. L'équipe utilisant le modèle COAMPS de Liu et Westphal [2001] a simulé un épisode de tempête survenu en Chine du Nord du 06 au 10 Avril 2001 (ams.confex.com/ams/pdfpapers/47118.pdf), et obtenu par leurs calculs des charges colonne de poussières étonnamment élevées (160-180 $kg.m^{-2}$). Un transport de poussières minérales de la Chine vers les USA a également été modélisé avec le modèle MM5 [In and Park, 2002] ainsi qu'avec RAMS [Uno et al., 2001]. Pour simuler les épisodes de transports de poussières qui ont eu lieu durant Mars et Avril 2001 en Chine, et qui furent suivis dans le cadre de la campagne de mesure ACE-Asia, Gong et al.,[2003] utilisent le modèle NARCM et calculent qu'une quantité totale de 252.8 Mt de poussières minérales de diamètre inférieur à 40 μm fut émise par les désert Est-asiatique entre le 01 Mars et le 31 mai 2001, dont environ 60% serait dû à 4 tempêtes d'intensités très élevées. Pour ne parler ici que des modèles de transports (les études des sources minérales en tant que telles seront discutées plus loin), l'actualité récente concerne aussi une tempête d'une intensité inégalée dans les annales météorologiques et survenue autour du 20 mars 2002 en Chine et en Corée [Park et al., 2005].

Pour se donner une idée des proportions relatives des intensités de tempêtes de sables, Wang et al. [2005] calculent en différentes régions chinoises l'évolution interannuelle des

tempêtes de sable sévères (*dust storm*, visibilités inférieures à 1000 m), des tempêtes de sable modérées (*blowing dust*, de visibilités jusqu'à 10000 m) et faibles (*floating dust*) et nous les reportons sur la *figure 1.6.*

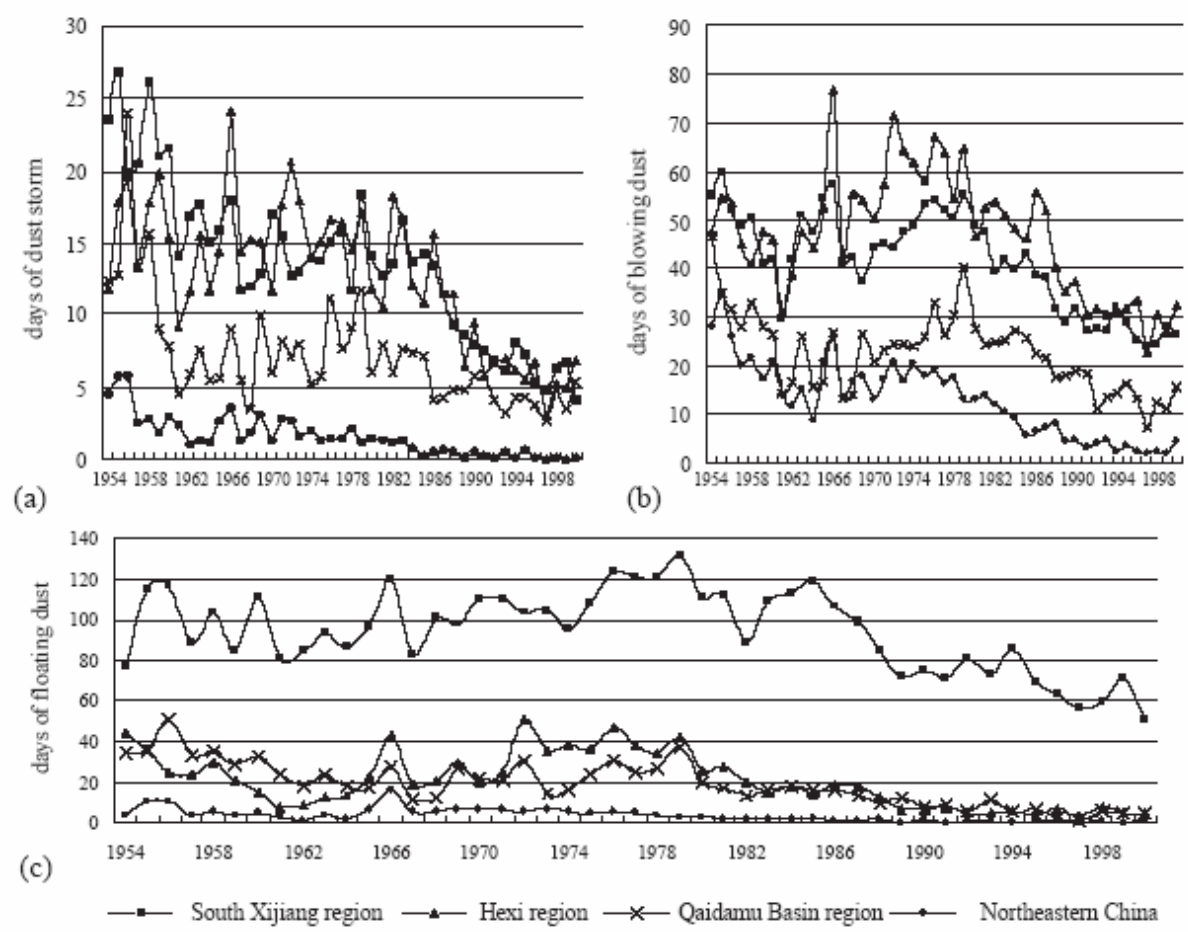


Figure 1.6 – Evolution interannuelle moyenne des 3 types de tempêtes de sable en Chine, basée sur une statistique de 1954 à 2000, d'après Wang et al. [2005]. (a) : tempêtes intenses, (b) : tempêtes modérées, (c) : tempêtes d'intensités faibles.

Il nous semble à la vue des occurrences respectives des différents types de soulèvements que des tempêtes d'intensités plus « modestes », concernant des transports de poussières sur les villes de quelques centaines aux premiers milliers de microgrammes par mètre cube, doivent donc absolument être traités. Ces tempêtes moins spectaculaires que celles que rapporte souvent la littérature sont, malgré tout, des cas d'école, et la difficulté de modélisation n'est pas moindre de parvenir à extraire un transport de poussières minérales d'un « bruit de fond » ambiant d'aérosol urbain qu'à simuler des transports de quantités exceptionnelles de ces mêmes poussières …

1.3.2 – Les groupes de travail qui étudient l'aérosol de pollution anthropique asiatique

Nous venons d'expliquer le travail réalisé par le DMIP consacré à l'aérosol terrigène naturel. Dans une démarche de collaboration analogue à celle du DMIP, le groupe participant à MICS-Asia (*Model InterComparison Study*) a procédé à une première phase de simulations d'aérosols de pollution, relative en particulier aux SO_2 et sulfates, et concernant les mois de Janvier à Mai 1993 [Carmichael et al., 2002]. Une seconde phase de modélisation faisant intervenir 8 modèles physico-chimiques est actuellement en cours (http://www.adorc.gr.jp/adorc/mics.html). Dans ce domaine chimique, comme dans le domaine de l'aérosol minéral, les différences de résultats sont encore importantes. Il apparaît qu'en plus des champs météorologiques et des conditions en limites de domaine, la caractérisation des sources de polluants (intensité des flux et spatialisation) soient tout particulièrement décisives dans la qualité des champs de polluants simulés. De même, les prises en compte de phénomènes de transformations chimiques plus ou moins complexes et les paramétrisations des vitesses de dépôt permettent d'affiner les concentrations et flux de dépôts des espèces chimiques. Nous aurons l'occasion au chapitre 4 de discuter nos tests de sensibilité des différents cadastres de polluants anthropiques disponibles concernant l'Asie.

1.4 Articulation de l'ouvrage

Nous espérons que cette thèse permettra à sa façon de réduire certaines des incertitudes concernant les tempêtes de sable les plus fréquemment observées et répondra, en attendant mieux, à une partie des interrogations soulevées par le DMIP. Nous avons pour objectifs, (i) de valider les développements qui aboutissent à la réalisation d'un cadastre d'émissions éoliennes applicable à la modélisation de soulèvements de poussières désertiques en Chine et Mongolie, (ii) de rendre compte des transports de ces poussières en Asie orientale, (iii) d'adjoindre la contribution d'aérosols anthropiques.

Nous avons, au cours de nos recherches, exploré quelques situations spécifiques comme des tempêtes de sable localisées au Nord du désert du Taklamakan en 1997, des événements de poussières survenues en Chine et en Corée en mars 2002, des transports de poussières en direction de l'Alaska … mais nous ne présenterons ici que les travaux achevés, c'est à dire ceux qui concernent les épisodes des printemps 2002 et 2005.

Après ce premier chapitre introductif, le deuxième chapitre de l'ouvrage sera consacré à la mise au point du cadastre des émissions éoliennes de poussières désertiques, élément de base de notre étude du cycle de l'aérosol en Extrême-Orient. Le chapitre 3 présentera les validations de cette source minérale dans les contextes de deux événements distincts survenus au printemps en Chine, l'un en 2002, l'autre en 2005. Le chapitre 4 complètera notre modélisation du cycle de l'aérosol asiatique par la prise en compte supplémentaire d'aérosols anthropiques représentatifs de la pollution observée sur la région.

Chapitre 2
Mise au point d'un cadastre d'émission éolienne d'aérosols désertiques destiné à des simulations méso-échelle

2.1 Le DPM de Marticorena-Bergametti

2.1.1 - Paramètrisation physique du modèle de soulèvement de poussières

Les émissions d'aérosols minéraux suivent fondamentalement un processus à effet de seuil. On constate en effet que les particules minérales sont mises en mouvement quand la vitesse du vent en surface atteint ou dépasse une valeur minimale, appelée « vitesse-seuil ». Pour modéliser ces émissions, la base de données disponible consiste en un jeu de mesures locales, ou – mieux - en des analyses à grande échelle, du type CEPMMT ou NCEP (voir liste d'acronymes en fin de texte). Dans tous les cas, se pose le problème de la représentativité spatiale. On est amené à supposer que le vent en surface considéré est représentatif du champ de vent sur la maille du modèle, un « vent moyen », en quelque sorte.

La difficulté principale de la modélisation d'un tel phénomène réside dans l'établissement d'une relation entre (i) le vent existant au-dessus du sol susceptible d'être source de poussières, (ii) la nature physique de ce sol (paramétrisation et texture), (iii) l'effet du vent moyen synoptique dans la couche limite de surface (CLS) sur les agrégats de surface (ou « grains du sol ») dont les mouvements sur le sol sous l'action du vent sont, nous le verrons, à l'origine du flux de poussière. Ce dernier point signifie que l'on doit relier le vent synoptique au vent au contact direct du sol et des obstacles éventuels (dans la couche limite interne CLI entre les obstacles eux-mêmes), sol sur lequel ce vent va finalement exercer un transfert d'énergie mécanique.

Si le régime de vent était laminaire, de vitesse $U(z)$ à la hauteur z au dessus du sol, la force de frottement $\mathbf{F}$ s'exerçant à la surface S de séparation des couches d'air s'oppose au glissement d'une couche sur l'autre et s'écrirait en module $F = \mu S \frac{\partial U}{\partial z}$ où μ est le coefficient de viscosité dynamique de l'air (unité: $kg.m^{-1}.s^{-1}$ ou Poiseuille, symbole Pl). Ainsi, le gradient de vitesse d'un vent laminaire induit la contrainte de cisaillement τ_χ exercée par le-dit vent sur la surface du sol par $\tau_\chi = \frac{F}{S} = \mu \frac{\partial U}{\partial z}$,[Greeyley et Iversen, 1985]. En régime turbulent,

situation générale dans l'atmosphère, on remplace la viscosité μ par le produit ρK, où ρ est la masse volumique de l'air et K le coefficient de viscosité turbulente. On a alors $\rho K >> \mu$.

Afin d'estimer le profil vertical de vent rencontré en fonction de l'altitude z, on utilise le profil logarithmique en conditions de neutralité thermique [Priestley, 1959] (on néglige la différence de température potentielle entre le sol et le niveau z). Dans un modèle de couche limite à flux constant [voir par exemple Saleye, 2004], on montre que $\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{U^*}{kz}$ où la grandeur U^* est homogène à une vitesse et est appelée *vitesse de frottement* ou *vitesse de friction*. Alors, la contrainte τ_0 exercée par le vent sur la surface z = 0 est égale à ρU_*^2. Le coefficient k est la constante de von Karman, égale à 0.4. En intégrant l'équation entre Z_0, hauteur où la vitesse U est supposée être nulle, et une hauteur supérieure z, on obtient le profil logarithmique de la vitesse (vitesse moyenne en toute rigueur) U sous la forme:

$$U(z) = \frac{U^*}{k} \ln\left(\frac{z}{Z_0}\right)$$

En pratique**,** des mesures de U(z) peuvent être réalisées par un mât fixé sur le terrain et instrumenté avec des anémomètres à 1m, 2m et 4 m [Abe et al., 2005]. On calcule une régression logarithmique retrouvant au mieux ces vitesses enregistrées. On extrapole ainsi la valeur U* relative à Z_0 locale. Le même principe d'itération est appliqué dans le cas de vents simulés.

L'échelle de longueur Z_0 est *appelée hauteur de rugosité aérodynamique*, elle contribue à traduire l'effet de la rugosité de surface sur l'efficacité qu'a le vent U à mobiliser la matière au sol. Sa détermination en liaison avec l'état de surface du sol est très complexe [Saleye, 2004; Laurent 2005], mais elle peut s'interpréter comme fournissant une hauteur d'échelle $h(Z_0)$ des effets cumulés des obstacles non érodables (micro-irrégularités du terrain, cailloux, rochers, végétation etc.) et des éléments érodables (les éléments du sol mobilisables) en dessous de laquelle, à une échelle de résolution horizontale donnée, le vent ne communique plus directement de tension de cisaillement à la surface. Au-dessous de l'ordre de grandeur z_0, les écoulements deviennent beaucoup plus difficiles à modéliser, confrontation de turbulences et de flux à tendances laminaires à proximité immédiate du sol, mais l 'adoption de l'échelle de rugosité dispense de devoir trop détailler ces phénomènes (modèle de couche limite interne [Marshall, 1971; Arya, 1975]).

En définitive, le vent distribue son énergie entre éléments érodables et éléments non érodables. La question sera alors de savoir si la fraction d'énergie disponible pour les élément érodables sera suffisante pour vaincre les forces maintenant les grains au sol et que l'on peut classer en forces de gravité, forces de cohésions interparticulaires [Iversen et white, 1982] et forces de capillarité en cas d'humidité suffisante [McKenna-Neumann et Nickling, 1989 ; Fécan et al., 1999 ; Ishizuka et al. [2005]. Ainsi, pour chaque type de sol (caractérisé par un certain nombre de paramètres physiques – dont Z_0 - qu'il reste à expliciter), il existe une vitesse de friction seuil U^*_t au-dessus de laquelle U, et par suite U^*, sera suffisante pour que le mouvement des grains constitutifs du sol soit amorcé.

Les vitesses de friction seuils relatives à différents types de sol et selon leurs diamètres sont accessibles par des expériences en souffleries [Gillette et al., 1982; Nickling et Gillies, 1989]. Elles varient de l'ordre de 0.2 $m.s^{-1}$ pour des grains secs, éléments d'un sol meuble et lisse et d'un diamètre d'environ 100 µm [Chepil, 1951] à plus de 1.8 $m.s^{-1}$ [Gillette et al., 1982]. A titre d'exemple, et pour dépasser le cadre de l'aérosol désertique, la vitesse de friction limite à la surface d'un tas de charbon de 12 m de haut (à 7% d'humidité) est d'environ 1.1 $m.s^{-1}$ pour une rugosité de 3 cm. La vitesse de friction associée à une vitesse de vent de 21 $m.s^{-1}$ (épisode de grand vent) dépasse 1.2 $m.s^{-1}$ et provoque donc un soulèvement de poussières carbonées (Source : Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Groupe de travail GIC impact sanitaire INERIS/DRC/AIRE/MDu). A l'opposé, pour des sols très difficilement érodables, protégés par une croûte superficielle (par exemple d'argile), les vitesses seuils atteignent 3 $m.s^{-1}$ [Gillette et al., 1980, 1982].

Des paramétrisations établies sur des régressions linéaires corrélant les fréquences de soulèvement d'aérosols désertiques et le taux de couverture neigeuse ont été menées en Chine et Mongolie [Kurosaki et Mikami, 2004] . Nous n'avons pas employé cette analyse car au moment de la réalisation des travaux de la présente thèse nous ne bénéficiions pas d'une cartographie du couvert neigeux aisément transposable sur la carte de sol. Il va de soi que cette piste statistique serait à approfondir afin d'en tester la pertinence au regard de nos objectifs liés à des événements de transports localisés au sortir de l'hiver dans des zones pouvant être enneigées. Pour des sols recouverts de neige, comme cela sera le cas dans certaines régions montagneuses où de hautes latitudes prises en compte dans cette étude, nous considérerons que toute érosion éolienne est inhibée.

Il faut maintenant préciser la paramétrisation physique des vitesses de friction seuil U^*_t.

Différents modèles de processus d'émission d'aérosols minéraux ont été développés depuis une dizaine d'années, [Marticorena et Bergametti, 1995 ; Shao et al., 1996 ; Alfaro et Gomes, 2001 ; Shao, 2001]. Ces « modèles de production de poussières », ou DPM (pour *Dust Production Model*) ont été validés à l'échelle réduite de la soufflerie et à méso-échelle dans le cadre d'expériences de terrain et de validations à partir d'images satellites (IDDI) (cela sera détaillé au paragraphe 2.1.2), avant d'être couplé à des modèles comme RAMS ou CHIMERE.

Pour modéliser les flux d'émission d'aérosols désertiques de diamètre inférieur à 20 µm nous utilisons le modèle de Marticorena et Bergametti [1995, 1997], ci-après noté MB95, développé au LISA.

Le modèle MB95 s'appuie sur l'équation d'Iversen et White [1982] plutôt que sur celle de Shao et Lu [2000] pour calculer les vitesses seuils observées $U^*_t(D_p)$ en fonction du diamètre D_p des agrégats du sol. Le modèle concerne plus particulièrement les aérosols de diamètre inférieur à 20 µm car les particules de diamètre supérieur ne participent pas de façon significative au transport éolien à grande distance. Les particules de diamètres élevés restent localisées à proximité immédiate des zones sources arides [Shao et al., 1993 ; Nickling, 1994]. Le minimum de vitesse seuil de friction est de l'ordre de 0.2 $m.s^{-1}$ sur une surface dite *lisse* ($Z_0 = z_{0s} = 10^{-3}$ cm ; voir plus bas la signification des symboles). Cette valeur minimale de $U^*_t(D_p)$ correspond pour cette gamme de tailles d'agrégats inférieures à 100 µm à une vitesse de vent seuil à 10 m de 7 $m.s^{-1}$.

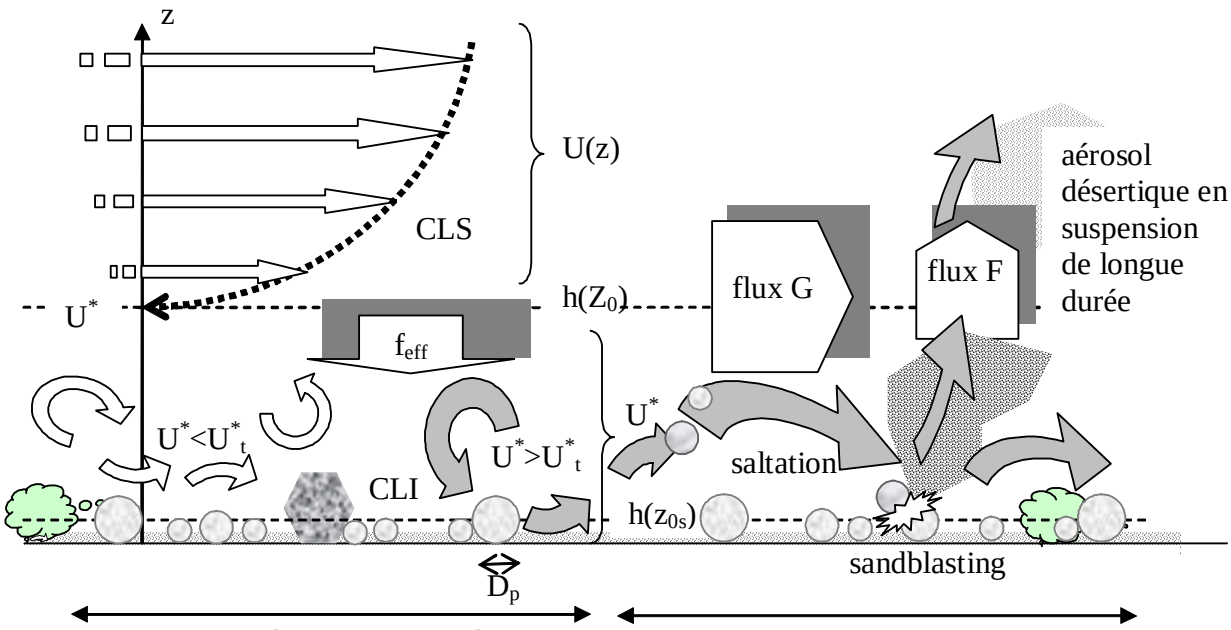
Dans le but de réaliser des simulations réalistes, il faut tenir compte de la rugosité réelle du sol, c'est-à-dire de la rugosité résultant de la distribution d'obstacles non érodables. Le modèle MB95 calcule U^*_t en prenant en compte les paramètres suivants: la hauteur de rugosité totale Z_0, la granulométrie des agrégats de surface D_p, et la hauteur de rugosité de la surface supposée lisse z_{0s}. La formulation résultante est résumée selon :

$$U^*_t(D_p, Z_0, z_{0s}) = \frac{U^*_t(D_p)}{f_{eff}(Z_0, z_{0s})}$$

où f_{eff} est la répartition de l'énergie du vent entre la surface érodable et les éléments non mobilisables. La hauteur de rugosité aérodynamique lisse z_{0s} s'obtient par $z_{0s} = D_p/30$

sauf si $Z_0 < z_{0s}$ (déserts très érodables) cas où logiquement on prend directement $z_{0s} = Z_0$.[Marticorena et Bergametti, 1995; Laurent, 2005]

La première étape du modèle de soulèvement d'aérosol est résumée de façon symbolique sur la *figure 2.1.* (sous partie 2.1-a).



2.1 - a- représentation synthétique des paramètres physiques déterminant U^*_t dans le modèle de soulèvement MB95

2.1 - b- Flux horizontal G et flux vertical F si $U^*>U^*_t$ dans le modèle de soulèvement MB95

Figure 2.1 – Représentation symbolique (sans échelle quantitative) des éléments du modèle de soulèvement MB95. CLS : Couche Limite de Surface; CLI : Couche Limite Interne ; $h(Z_0)$: hauteur d'échelle proportionnelle à la hauteur de rugosité totale ; $h(z_{0s})$: hauteur d'échelle proportionnelle à la hauteur de rugosité lisse ; U : profil log. de vitesse moyenne du vent laminaire dans la CLS en fonction de l'altitude z et de U; f_{eff} : partition de l'énergie transmise vers la CLI ; U* : vitesse de friction dans la CLI issue de U ; U^*_t : vitesse seuil de friction déduite de (f_{eff}, Z_0, z_{0s})*

Cette première étape du DPM aboutit à la création d'un flux horizontal d'agrégats. Pour les agrégats de diamètre supérieur à 500 µm se mouvement se limitera à une *reptation* au contact du sol [Pye, 1987 ; Shao, 2000]. Pour les agrégats plus légers, on parle de flux horizontal de *saltation*. Le schéma a pour séquence simplifiée :

► $U \rightarrow U^{*}\left(> U^{*}_{t}\right)$: Saltation de premiers agrégats (D_p = 70-500 µm), et en moindre proportion : Suspension de particules (D_p < 70 µm)

► Flux horizontal G de saltation des agrégats et particules sur ~ 1.5 m de haut

► « Sandblasting » : bombardement des agrégats au sol par les agrégats et particules en saltation

► saltation ► « sandblasting » ► etc

puis en seconde étape (ci-après) :

► Flux vertical F (voir ci-dessous) d'aérosol en suspension: transport longue distance si D_p < 20 µm

► Impact sur une cible non mobilisable, épuisement du sol, chute du vent etc : transport à courte distance

Une fois la particule injectée avec suffisamment d'énergie dans les premiers mètres d'atmosphère, à la suite des processus de saltation et de « sandblasting » antérieurs, les forces auxquelles elle est soumise vont contrôler sa suspension. En ordre de grandeur, si la vitesse de friction (c'est une bonne estimation de la composante ascendante de la turbulence) est supérieure à la vitesse limite de chute (estimée dans de l'air immobile), la particule suivra une trajectoire ascendante. Ce sont ces fines particules, ou aérosols, qui constituent l'essentiel du flux vertical d'aérosols désertiques F (en masse/unité de surface de sol et par unité de temps). Cette seconde étape du modèle de soulèvement d'aérosol est symbolisée sur la *figure 2.1*. (sous partie 2.1-b).

L'efficacité de la production de fines particules par sandblasting , fréquemment notée α (en cm^{-1}), relie de façon linéaire le flux vertical F au flux horizontal G (en $g.cm^{-1}.s^{-1}$) [Gillette, 1979] : $F = \alpha.G$. La paramétrisation du sandblasting via la détermination empirique [Marticorena et Bergametti, 1995] ou explicite de α [Alfaro et Gomes, 2001; Shao, 2001] demeure de nos jours une difficulté majeure dans la mise au point des modèles de soulèvement d'aérosols minéraux. Nous utilisons dans ce travail la distribution du coefficient α des divers types de sol donnée par Marticorena et Bergametti [1995] liée à la teneur en argile des sols (supposée inférieure à 20%).

Marticorena et al. [1997b] ont comparé les vitesses de friction seuil calculées à partir de leurs expressions de α avec un ensemble de mesures réalisées dans des conditions naturelles à l'aide souffleries portables [Gillette et al., 1982 ; Nickling et Gillies, 1989]. Les surfaces testées correspondent à dix types de surface différents représentant des Z_0 compris entre environ 10^{-5} cm et 0.37 cm. Le très bon accord obtenu entre les mesures et la modélisation tend à démontrer la pertinence du schéma de répartition de l'énergie développé. En outre, les sols des surfaces testées contiennent toujours des particules dans le domaine de taille optimal pour l'érosion éolienne.

Les types de sols considérés sur la partie du continent asiatique modélisée sont proposés sur le *tableau 2.I* avec les coefficients α associés, coefficients issus de Marticorena et al. [1997a].

Type de sol	Nomenclature	Code	D_{mod} 1 (µm)	D_{mod} 2 (µm)	D_{mod} 3 (µm)	α (cm^{-1})
1	silty fine sand	SFS	210	125	0	4.45×10^{-6}
2	medium sand	MS	210	690	0	5.50×10^{-7}
3	coarse sand	CS	0	690	900	1.00×10^{-7}
4	coarse medium sand	CMS	210	690	900	3.25×10^{-7}
5	fine sand	FS	210	0	0	1.00×10^{-6}
6	silty medium sand	SMS	210	690	125	4.16×10^{-6}
7	salty medium sand	SEM	125	520	0	4.06×10^{-6}
8	salty silt fort	SEF	125	520	0	3.14×10^{-6}
9	clayey soil	Clay	0	0	0	$0.00 \times 10^{+0}$
10	salt waste	SW	125	520	0	6.50×10^{-6}
11	agricultural soil	AGS	125	0	0	1.00×10^{-5}
12	salty fine sand	SES	125	520	210	4.25×10^{-6}
13	silty coarse sand	SCS	690	125	0	5.00×10^{-6}

Tableau 2.I – Types des sols issus de la nomenclature Marticorena et al. [1997] utilisés par le DPM, diamètres modaux dans une hypothèse de distribution granulométrique trimodale et coefficients α.

Le *tableau 2.I* rappelle dans le même temps que les coefficients à employer dans notre travail, les diamètres modaux des modes de répartitions granulométriques (à priori

trimodaux), en remarquant qu'un « 0 » dans le tableau signifie que la distribution lognormale est, en pratique, bimodale et non pas trimodale.

2.1.2 – Applications du DPM MB95 au transport d'aérosol désertique en Afrique

Le DPM MB95 s'est vu appliquer à l'origine à la mise au point d'un cadastre des zones d'émission sur la région saharienne du continent africain [Marticorena et al. 1995; Marticorena et al. 1997]. Ce cadastre a, par suite, permit la mise en place de simulations de tempêtes et de transports d'aérosols minéraux à échelle locale et à plus grande échelle comme par exemple le transport de poussières au dessus de l'océan atlantique [Bory et al., 2002], en direction des Caraïbes, et au dessus de la Méditerranée, en direction du continent européen.

Rappelons quelques résultats significatifs relatifs à ces régions désertiques, sans nous limiter bien sûr aux seules applications du DPM MB95, la communauté scientifique étant, dans le domaine des DPM, des plus prolifiques …

- Les vitesses seuil d'érosion

L'étude détaillée des vitesses seuil à 10 m montre que les soulèvements ont lieu pour des vitesses excédant en moyenne basse les 7 $m.s^{-1}$. Cependant les différents utilisateurs de ce cadastre ont pu bénéficier de données de terrain les amenant à modifier certains paramètres, aboutissant ainsi à des vitesses seuils légèrement différentes sur certaines régions particulières. Par exemple, sur une zone centrée en 22°N, 6°W (Sud algérien), Cautenet et al. [2000], simulent des flux émis à partir d'une vitesse seuil de 6 $m.s^{-1}$

- Les flux d'émission :

Jones et al. [2003] ont employé le " Model of Atmospheric Transport and Chemistry" [Rasch et al. 1997] avec les champs météorologiques re-analysés par le NCEP–NCAR [Mahowald et al., 1997]. Ils en ont déduit une statistique des flux de poussières émises sous l'action du vent en moyenne sur une durée de 21 ans en Afrique (*figure 2.2*) .

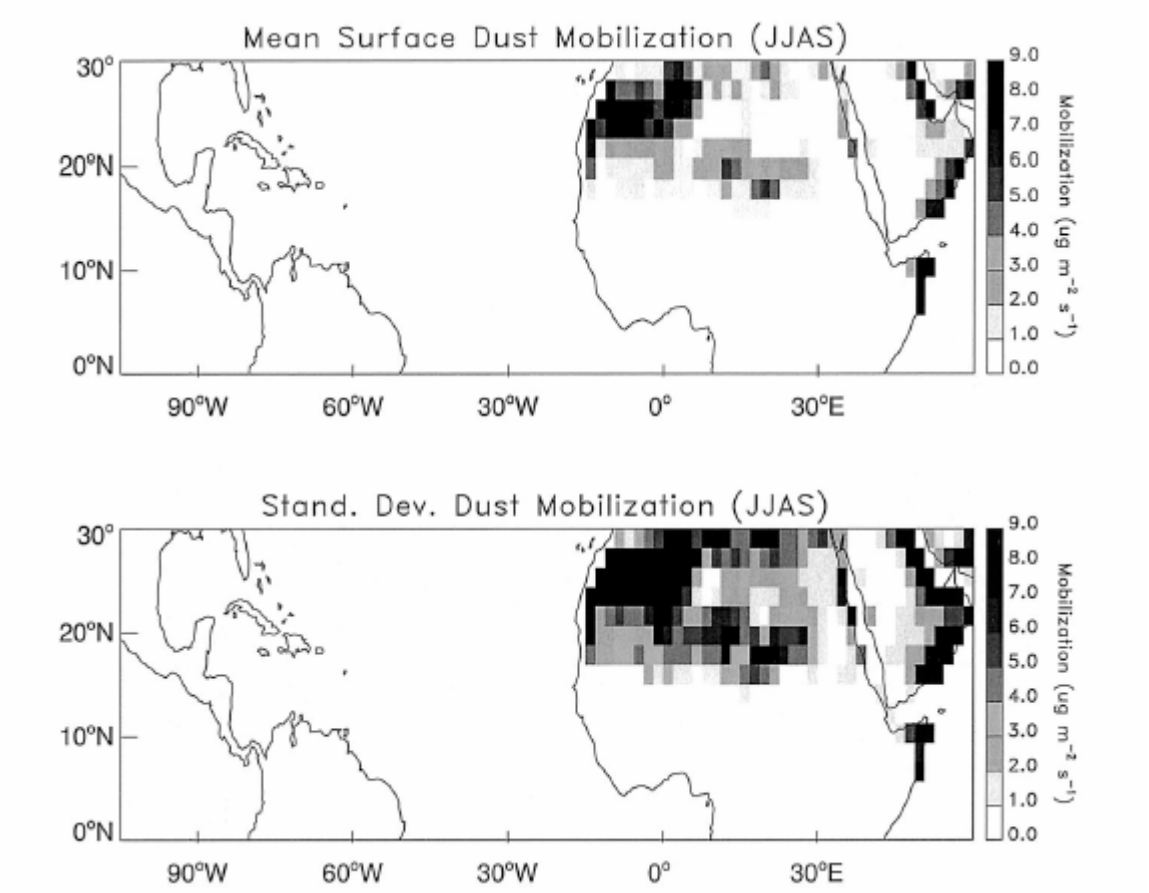


Figure 2.2 – Moyenne saisonnière (haut) et déviation standard (bas) du flux de poussières désertiques en Afrique (en $\mu g.m^{-2}.s^{-1}$) pendant la période d'été (01 juin – 20 Sept) de 1979 à 2000 [Jones et al., 2003].

Luo et al. [2003] donnent une échelle annuelle moyenne variant selon l'endroit du globe de 0 à $1.6.10^{-2}$ $mg.m^{-2}.s^{-1}$, ces résultats sont du même ordre que ceux de Ginoux et al. [2001]. Dans le même esprit, Grini et al. [2004] proposent des flux d'émission à l'échelle globale simulés en utilisant le modèle DEAD (*Dust Entrainment and Deposition model*) combiné au modèle de transport chimique CTM2 avec les donnnées météorologiques de 1996.

Si ces résultats (par exemples les cartographies africaines indiquant une production d'aérosol comprise entre 10^{-5} et 10^{-2} $mg.m^{-2}.s^{-1}$) nous donnent des indications pertinentes pour une climatologie globale (Afrique et dans une mesure moindre Asie et Australie), ils trouvent leurs limites à échelles spatiales et temporelles plus réduites. Si ce type de carte donne une indication des zones contribuant le plus activement - à cette échelle de temps - aux soulèvements de poussière, pour autant, des épisodes brefs mais très productifs peuvent très

bien avoir lieu sur des sols peu émissifs sur de longues durées en moyenne [Luo et al., 2004] et contribuer ainsi à des mises en suspension de masses transportées bien supérieures aux quantités émises par des zones où le flux moyen interannuel serait plus important.

Des simulations de flux d'aérosols désertiques plus localisées sur l'Afrique ont été conduites par Marticorena et al. [1997a]. La majorité des flux simulés s'inscrit dans une gamme comprise entre 10^{-12} et 10^{-9} g.cm^{-2}.s^{-1} (i.e. entre 10^{-5} et 10^{-2} mg.m^{-2}.s^{-1}). Cependant, de très rares événements sont calculés comme émettant des flux d'un ordre de 10^{-7} et 10^{-6} g.cm^{-2}.s^{-1} (10 à 10^{2} mg.m^{-2}.s^{-1}), preuve s'il en est de la variabilité de ces flux. En simulant une journée d'été, Cautenet et al. [2000] obtiennent des flux atteignant un maximum entre 10^{-5} et 10^{-4} kg.m^{-2}.s^{-1} (soit entre 10^{2} et 10^{3} mg.m^{-2}.s^{-1}) pour des vents de surface de 10 m.s^{-1}, durant quelques heures.

- Concentrations massiques d'aérosols transportés

Les concentrations en aérosols désertiques sont très difficilement mesurables près des zones sources, car on ne dispose généralement pas de stations de mesure dans les régions désertiques émissives. On peut cependant inférer, à partir de mesures plus éloignées, que dans les zones sources les concentrations y dépassent aisément plusieurs milliers de µg.m^{-3}. En revanche, des concentrations en poussières minérales (relevés quotidiens 1992-1996) aux Iles du Cap Vert situées à 500 km à l'ouest de Dakar [Chiapello et al., 1995], et, en zone sahélienne, des mesures de dépôt humide associées à des mesures de concentrations en aérosols mises en oeuvre depuis 1994 (réseau IDAF) , permettent de valider les résultats de simulations relatives à l'Afrique et au transport trans-océanique. Les valeurs observées au Cap Vert varient de quelques unités à 90 µg.m^{-3} en moyenne mensuelle , tandis qu'aux Caraïbes, on ne relève plus qu'une concentration maximale de 25 µg.m^{-3} (en opposition de phase saisonnière avec le Cap Vert).

Des séries temporelles de concentrations en aérosols minéraux sont également disponibles en Corse, de 1985 à 1988 [Bergametti et al., 1989], en Espagne [Rodriguez et al ., 2001], en Sardaigne (programme MINATROC), aux Iles Canaries (ACE−2 Experiment). Le suivi des concentrations en aérosols à la station de Tenerife (Iles Canaries) à 2400 mètres d'altitude depuis 1988 [Arimoto et al.; 1995] permet de disposer d'un point de contrainte sur le contenu en aérosol en altitude simulé par le modèle (transport d'été). Certains travaux internes à l'équipe Modélisation-Transport du LaMP (Rolland, DEA 2004; Briday, Master-2, 2005) ont montré la difficulté qu'il existe encore à adapter le DPM à ces mesures à certaines époques de

l’année, peut-être à cause de zones sources saisonnières et non encore répertoriées sur le littoral sud de la Méditerranée – mais ceci n’est pour le moment qu’une hypothèse. On peut cependant estimer par ces calculs qu'un quart de l'aérosol nord africain est orienté en direction de l'Europe.

Il est à noter qu'un réseau équivalent de données de terrain, aussi dense et diversifié, s'est révélé être difficilement accessible en ce qui concerne l'Asie, en particulier depuis l'Europe.

- Flux de dépôts

Le flux de dépôt à échelle globale est par exemple restitué par Ginoux et al. [2001], on peut observer les flux de dépôt annualisés en particulier en Afrique et en Asie sur la *figure 2.3*. On peut noter que si les dépôts les plus intenses se produisent près des zones sources, on peut observer ce phénomène sur toute la surface de la Terre. La répartition est essentiellement zonale (vents dominants) et concerne plus particulièrement l’hémisphère nord (où existent la majorité des déserts mondiaux).

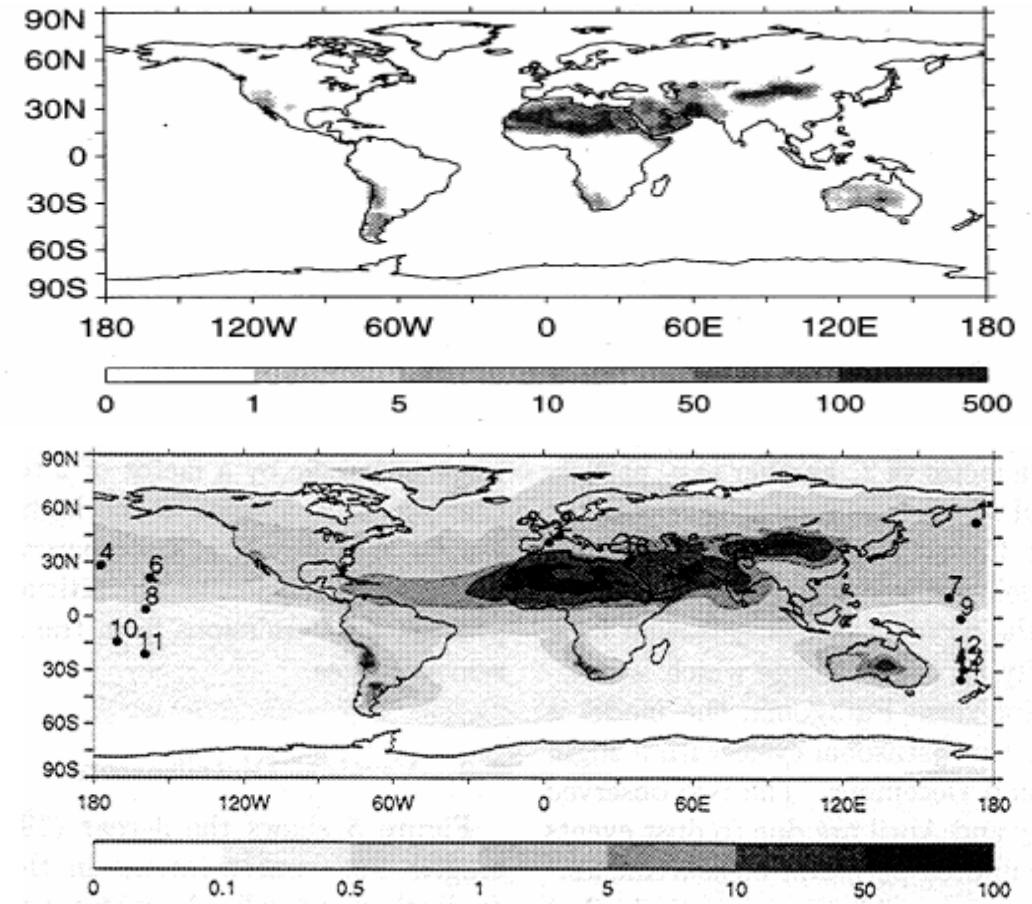


Figure 2.3 – Distribution globale des flux annuels d'émission (haut), et de dépôt (bas), de poussières minérales, en g.m^{-2}.an^{-1}, d'après [Ginoux et al., 2001].

- Chimie et mélange

La prise en compte de la transformation de l'aérosol africain est une piste de recherche active. Balkanski et al., [2003] détaillent l'impact des aérosols africains sur la pollution du Bassin Méditerranéen et les évolutions concomitantes de l'aérosol et de sa composante anthropique. De même, Desboeuf et Cautenet [2005] ont cherché à caractériser, « transporter », et « faire évoluer », l'aérosol minéral depuis ses sources, en utilisant le modèle RAMS (détaillé plus loin) couplé au DPM MB95.

Ce domaine d'étude réunissant la physique et la chimie est d'autant plus pertinent en Asie que la pollution anthropique (en particulier en Chine) y est beaucoup plus forte qu'en Afrique.

A mi-chemin entre ces continents, le DPM MB95 a été utilisé pour simuler l'émission et le transport des aérosols minéraux, en même temps que des aérosols anthropiques (les polluants carbonés du type *Black Carbon* BC) issus du sous-continent indien pendant la campagne INDOEX 1999 [Minvielle et al., 2004].

- Aspect radiatif : données de télédétection utiles aux validations des simulations et modèle radiatif approprié.

Cet aspect de l'impact de l'aérosol africain, comme du cycle de l'aérosol désertique en général, ne peut pas être découplé du point d'étude précédent.

Un élément de validation des simulations de transport est directement fourni par la spécificité radiative de l'aérosol minéral via les données du réseau AERONET (http://aeronet.gsfc.nasa.gov/) [Holben et al., 2001]. Les particules minérales ont d'ordinaire des diamètres plus importants que les polluants anthropiques. Les premières n'offrent pas de signatures spectrales caractéristiques : les courbes d'extinction du rayonnement solaire direct par les aérosols minéraux sont très proches les unes des autres à toutes les longueurs d'onde du photomètre, alors que les polluants anthropiques donnent des courbes bien distinctes aux différentes longueurs d'onde.

Cette méthode sera utilisée pour diagnostiquer autant que faire se peut l'aérosol minéral en Asie et en Afrique. Sur le continent africain, de nombreuses références proposent des résultats des mesures, entre autres [Ichoku et al., 2003] pour l'Afrique du Sud. Cette

campagne de mesure a comparé les résultats obtenus par AERONET et par les observations satellites – entre autre dans le visible - du groupe MODIS (http://modis.gsfc.nasa.gov/). Les données MODIS constituent un panel de choix pour l'étude du cycle complet de l'aérosol minéral, comme l'ont vérifié et mis en oeuvre par exemple Tanré et al, [1997], Bellouin et al. [2003], Kinne et al. [2003], Leon et al., [2003] ou Levy et al. [2003].

Les mesures AERONET peuvent être complémentaires d'autres données satellitaires, comme POLDER-1 [Zhang et al., 2000] (ref. citées) ou TOMS [Moulin and Chiapello, 2004] (http://toms.gsfc.nasa.gov/).

Enfin, les observations exploitant le contraste entre l'IR tellurique et celui signant la présence de poussières en suspension (données issues du satellite METEOSAT http://www.eumetsat.int/idcplg?IdcService=SS_GET_PAGE&nodeId=31&l=en dans la bande des 10.5-12.5 µm) sont à la base de la méthode de l'IDDI (*Infrared Dust Difference Index*) de Legrand et al. [1994, 2001], méthode employée aussi par Wald et al., [1998] ou Brooks [2004] et aussi Marticorena et al., [1997].

Les codes radiatifs disponibles à la base dans le modèle RAMS ne prennent pas en compte les effets radiatifs des aérosols [Minvielle, 2003] . Par conséquent, le code radiatif EC3 [Fouquart and Bonnel, 1980], [Morcrette, 1989], après avoir été modifié pour tenir compte des propriétés radiatives des aérosols, a été couplé *on-line* aux versions 3b [Chomette, 1999] et 4.3.0 [Minvielle, 2003] de RAMS. Par «couplage *on-line*» ou «en ligne» pour parler français, on entend que le modèle EC3 reçoit du modèle RAMS l'information sur la concentration en aérosols en tout point de grille et à chaque instant. Les taux de réchauffements dus aux aérosols sont alors calculés par EC3 et renvoyés au modèle RAMS qui les ajoute aux autres taux de réchauffement, d'où une possibilité de représenter de façon réaliste les couplages radiatifs/convectifs. Pour les aérosols minéraux, Chomette [1999] a montré que la prise en compte des rétroactions rayonnement/dynamique en surface peuvent avoir un fort impact (rétroaction négative) sur l'épaisseur optique des aérosols minéraux en zone source. Minvielle et al.[2004a, 2004b] ont simulé l'effet semi-direct sur les nuages stratiformes typiques de la mousson d'hiver sur l'Océan Indien Nord et vérifié que les couches de pollution anthropiques peuvent fortement modifier le développement des champs nuageux. Ce code radiatif a également été utilisé en *off-line* par Pradelle et al. [2002] pour calculer les forçages radiatifs de l'aérosol minéral et des particules carbonées issues des feux de biomasse sur l'Atlantique tropical oriental.

2.2 L'adaptation du modèle MB à l'Asie du Nord-Est dans le cadre de cette thèse.

Comme nous avons déjà eu l'occasion de le mentionner, les ressources bibliographiques et les ressources en termes de données de terrain se sont, au-delà parfois de la barrière linguistique, révélées délicates à obtenir. Disposant d'informations moins précises que celles relatives à l'Afrique Saharienne ou au Moyen-Orient, le but du présent travail était justement d'arriver à créer à partir du fond disponible une source réaliste facilement exploitable pour les simulations futures.

Les difficultés dans cette recherche documentaire furent dans un premier temps (2.2.1) de délimiter la zone géographique à caractériser, de choisir un maillage pour discrétiser le cadastre, mais plus encore de trouver des données concernant la texture des sols afin de retrouver les catégories de sol (nomenclature *tableau 2.I*) employées par le DPM MB95. Dans un second temps, il a fallu disposer de résultats de mesures in-situ servant de contrainte aux simulations produites afin de pouvoir affiner, par «runs» successifs, le cadastre d'émission (2.2.2).

2.2.1 – Cadastre spatio-temporel des types de sol en Chine et en Mongolie

- Panorama général : Sources et puits d'aérosols désertiques en Asie de l'Est.

Les sources de poussière minérales dans le monde sont - dans leurs grandes lignes - bien identifiées et ont été cataloguées à l'occasion de nombreuses études. En ce qui concerne Chine et Mongolie, les sources principales de poussière sont réparties dans des régions arides et semi-arides. Ces aires géographiques couvrent 13.6% du pays [Zhu et al., 1980]. Plus précisément, les tempêtes de poussière observées en Chine et Mongolie (et par contrecoup sur les deux Corée et le Japon), proviennent généralement de deux régions distinctes [Chang et al., 1996; Xiao et al., 1997 ; Zhang et al., 1997] détaillées ci-dessous ((*figure 2.4*) :

- la région du Nord : l'arc frontière avec la Mongolie

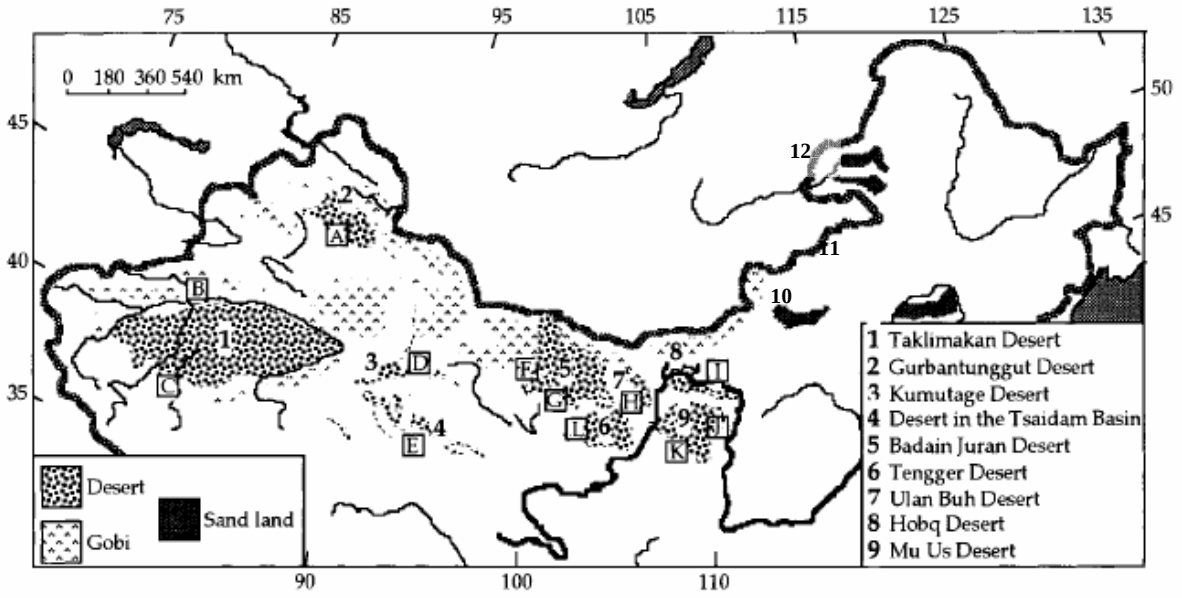
- les zones sud et occidentale de la frontière Chine-Mongolie, y compris les déserts de Gobi en Mongolie même, situés de 100° à 110°E et de 39° à 45°N avec une superficie totale estimée à 1 000 000 km^2;
- les déserts dans la large boucle Nord du Huang he (le « Fleuve Jaune »): désert de Mu Us et désert de Hobq (ou Qubq) s'étendant vers la frontière Mongole, formant l'ensemble de l'Ordos (90,000 km^2). Les déserts à l'Est de cette boucle fluviale: le plateau d'Alxa (ou Alashan), zone remarquée pour l'intensité des tempêtes y survenant, recouvrant les déserts de Badain Jaran (49,000 km^2), Tengger et Ulan Buh.
- les déserts du Nord Est de la Mongolie intérieure, Hulun Buir (frontalier avec la Russie), Korqin (ou Horqin) et Otindaq ;

Ces déserts font partie d'un même ensemble pour certains auteurs, ensemble qu'on pourrait appeler « grand » Gobi.

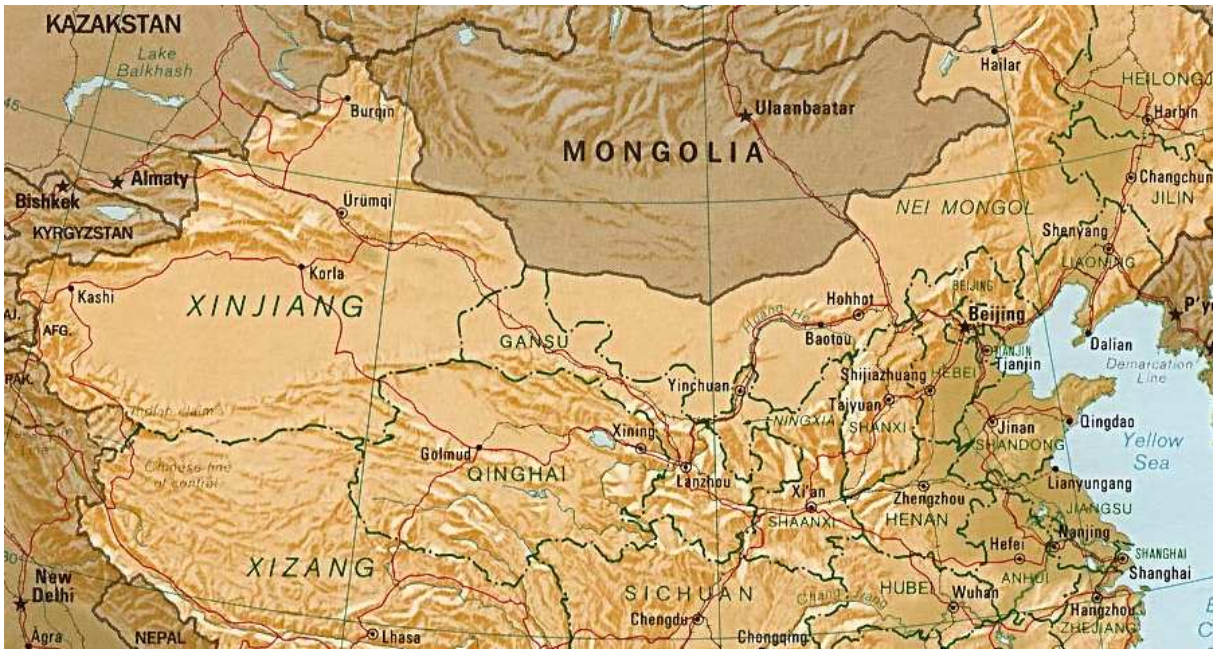
Signalons que l'idée d'un continuum des déserts chinois, à l'image de ce qui peut être constaté dans le Sahara, s'avère fausse pour l'ensemble du territoire, car les reliefs (*figure 2.5*) et les distances empêchent une réelle connection entre eux.

- les régions du Centre-Nord et du Nord-Ouest : les régions du Qinghai et du Xinjiang

- les déserts de la région au Centre-Nord de la Chine présente des chaînes montagneuses et des zones arides comme les déserts du Qaidam (ou Tsaidam) et de Kumtaq (ou Kumutage).
- à l'extrême Ouest de la Chine on trouve le large bassin du Tarim occupé par le désert du Taklamakan (ou Taklimakan selon les auteurs) d'une superficie de 270,000 km^2 et qui s'étend approximativement des longitudes 78° à 88° E, et des latitudes 37° à 40° N. Cette vaste zone est également identifiée comme source importante de poussière par Xuan et Sokolik [2002] qui lui attribuent un taux d'émission (en PM10) d'environ 0.38 $tonne.an^{-1}.ha^{-1}$.
- enfin le désert du Gurbantunggut ou Junggar Pendi (ou encore Kurban Tunggut), dans le Xinjiang, aux marges Nord Ouest du pays.



Figures 2.4 (haut) et 2.5 (bas) –
2.4 : Carte des principales zones désertiques en Chine et Mongolie, adapté de [Xiao et al.,1998]. Légende chiffrée sur la carte complétée des références 10- Otindaq, 11-Korqin et 12-Hulun Buir. Les auteurs précisent les 3 grandes catégories de sol présents selon leur terminologie : « Desert » (désert de sable) – « Gobi » (désert de cailloux) – « Sand land » (sols sablonneux, sans dunes élevées, en voie de désertification).
2.5 : Carte indicative des reliefs en Chine.



Après avoir été émise depuis ces différentes régions, la poussière éolienne se redépose sur plusieurs milliers de kilomètres. En Chine les deux principales zones de dépôts sont localisées sur le plateau de Loess au centre du pays (*figure 2.6*) et le désert de Taklamakan lui-même [Sun et al., 2001, 2005; Guo et al., 2002]. La poussière soulevée dans le désert du

Taklamakan peut rester bloquée sur le bassin du Tarim mais peut également voyager loin vers l'Est. Ce cas de transport longue distance s'opère à des latitudes et des altitudes élevées comme le montre l'analyse de la tempête de 1998 (18-19 avril), [Sun et al., 2002] si bien que le panache de poussière peut traverser l'Océan Pacifique jusqu'à l'Amérique du nord (ce transport trans-océanique a également lieu à partir de flux issus de la zone du "grand" Gobi). Dans ce cas, les puits sont tout autant océaniques et s'étalent sur près de 10 000 km d'Ouest en Est.

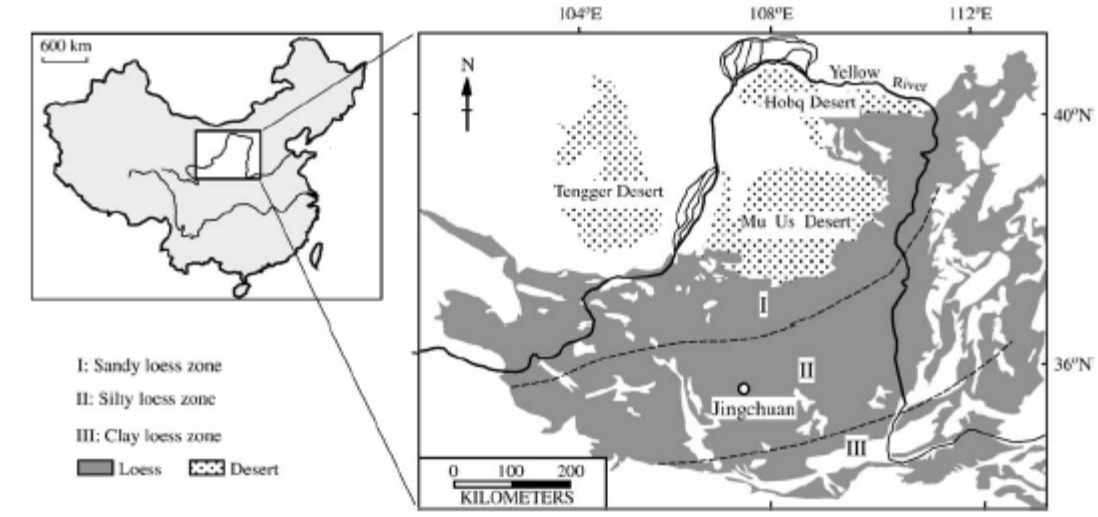


Figure 2.6 – Localisation du puit terrestre des aérosols désertiques sur la région des Loess [Sun et al., 2005].

- Panorama général: variabilité climatologique des tempêtes de sable

Les tempêtes de sable dans la région du "grand" Gobi ont pour caractéristiques météorologiques d'être induites par des perturbations mésoéchelles sous l'influence synoptique de déplacements de fronts anticycloniques froids provenant de latitudes élevées. Dans le désert du Taklamakan (Chine du Nord-Ouest), la poussière peut être injectée dans les couches atmosphériques par suite de phénomènes météorologiques moins organisés et géographiquement circonscrits au bassin du Tarim [Takemi and Seino, 2005].

Les analyses statistiques montrent que les tempêtes de sable suivent une variabilité interannuelle notable [Zhang et al., 2003] : le nombre d'événement varie de moins de 100 (1997) à plus de 250 (1966, 1971). Sur la base de données relevées de 1950 à 1998, on constate que, dans la partie orientale de la Chine, la fréquence des tempêtes durant les années

1950–70 était environ en proportion double de celles survenues après le milieu des années 80 [Qian et al., 2002]. Les auteurs expliquent cette décroissance par un réchauffement probable du climat en Mongolie et un refroidissement en Chine. Cette diminution du contraste thermique aurait pour effet de réduire le gradient thermique méridien, ce qui défavoriserait ainsi la formation des cyclones au Nord de la Chine. Cette variabilité, comme les bilans massiques annuels de flux d'aérosols, intéressera d'avantage les prédictions climatiques sur le long terme proposées par des modèles globaux que nos simulations qui concernent des événements de durées allant de quelques heures à quelques dizaines de jours au plus.

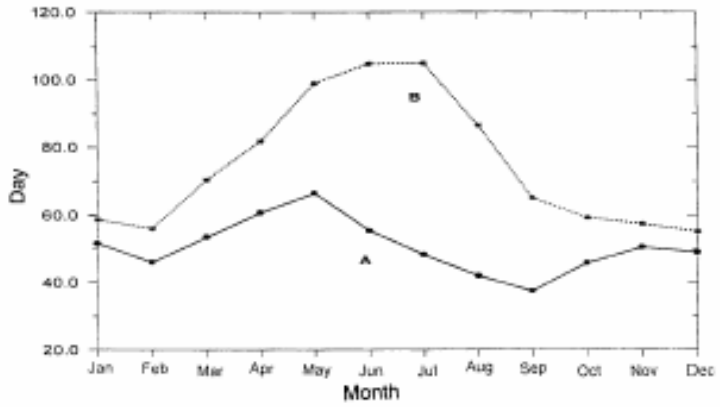


Figure 2.7 – Climatologie mensuelle moyenne des journées d'activités cycloniques sur l'Asie orientale. La courbe (A) indique les événements les plus intenses quand la courbe (B) considère en plus des événements moins intenses [Qian et al., 2002].

Les tempêtes de sable ont lieu sur la zone Chine (Nord) – Mongolie – Corée (Nord et Sud) – Japon durant le printemps, et, à une moindre fréquence, à l'entrée de l'Hiver [Sun et al., 2001]. Ainsi, Qian et al. [2002] (*figure 2.7*) identifient en 38 ans un maximum de 65 journées en Mai sujettes à un fort événement lié à des poussières désertiques, tandis que 37 journées analogues sont décomptées en Septembre. Le printemps 2001 fut la saison la plus prolifique en tempêtes de sable depuis le milieu des années 80 [Li and Zhai, 2004]. En ce qui concerne les tempêtes les plus intenses (visibilité inférieure à 200 m et vents supérieurs à 20 $m.s^{-1}$), Zhou et al. [2003] établissent qu'une centaine de tempêtes de sable intenses ont eu lieu au NW de la Chine durant la seconde moitié du 20^{e} siècle. Ils confirment le fait que les tempêtes les plus sévères ont lieu durant les mois de mars, avril et mai, cette période représentant 82.5% des événements recensés en moyenne sur une année. Les années 1990 sont celles de la fréquence la plus faible des tempêtes intenses, mais on constate une tendance

à la hausse depuis 1997. Les auteurs précisent que la variabilité des tempêtes les plus intenses est corrélée à celle des tempêtes en général, quelle que soit leur intensité, et récapitulent, sur la *figure 2.8*, les lieux géographiques où ont eu lieu les tempêtes les plus sévères durant les 50 dernières années, désignant les désert du Taklamakan et de Gobi comme les lieux les plus fréquents de tempêtes de sable.

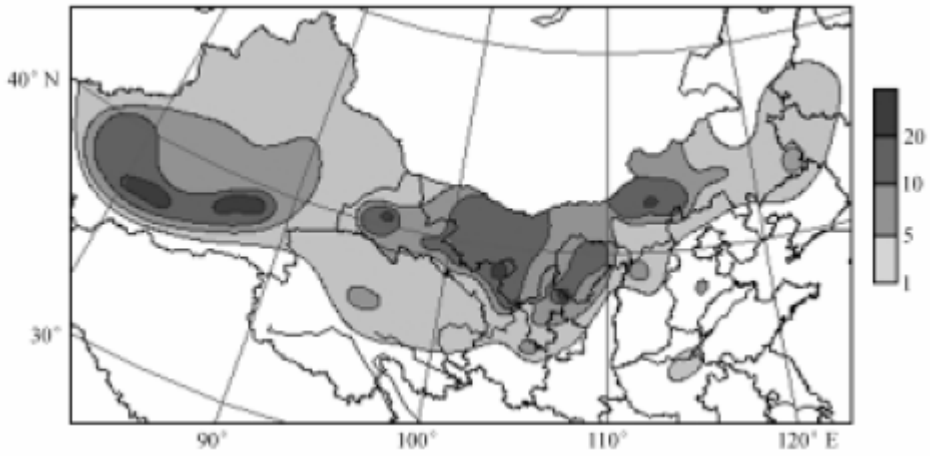


Figure 2.8 – Distribution spatiale du nombre de tempêtes de poussières les plus sévères entre 1954 et 2002 en Chine [Zhou et al., 2003]. Codes couleurs : intervalles des nombre de tempêtes.

La *figure 2.9.a* [Natsagdorj et al., 2003] complète le tableau pour le Nord de la région étudiée, en précisant les fréquences en Mongolie et confirme que les événements les plus fréquents se situent dans le désert de Gobi au Nord de la frontière avec la Chine, au sud de la chaîne de l'Altaï (Sud Ouest de la Mongolie) et autour du lac Ulaan-nuur et de Zamiin-Uud. Xuan et Sokolik [2002] qualifient la région Est asiatique de "*extra-high frequency region of dust storm occurrences*".

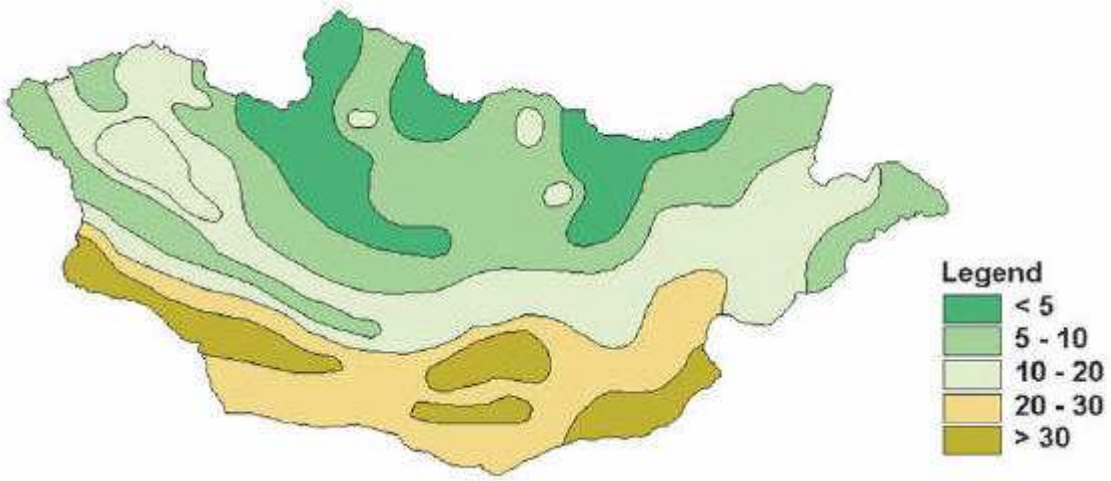


Figure 2.9.a – Distribution spatiale de la fréquence annuelle moyenne des tempêtes de poussières entre 1937 et 1999 en Mongolie [Natsagdorj et al., 2003]. Codes couleur: nombre de jours de tempêtes par an.

On peut reprendre l'analyse radiative pour conforter ces statistiques, en particulier à l'échelle saisonnière, comme le proposent Wang et al. [2004] (*figure 2.9.b*) à Dunhuang (40.09°N, 94.41°E), ville située au Nord Ouest de la Chine. Plus le coefficient d'Angström est faible, plus le mode granulométrique de l'aérosol est grossier et est caractéristique des particules minérales désertiques.

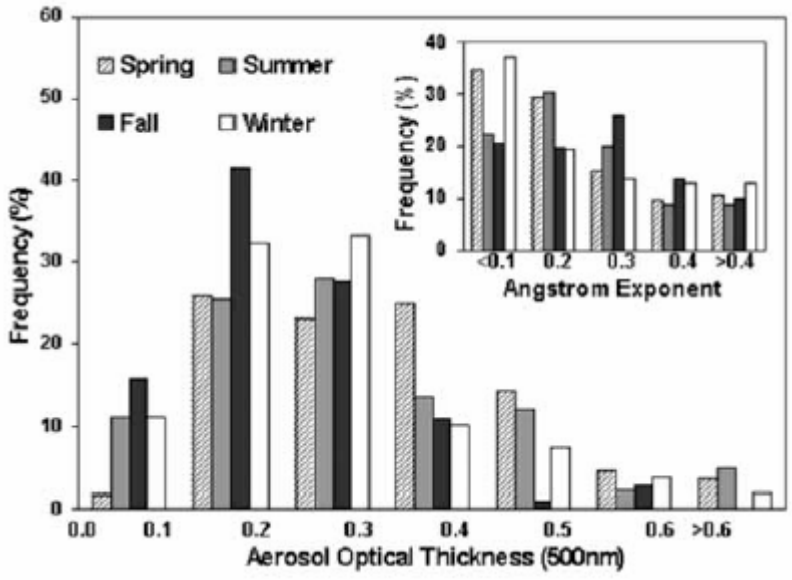


Figure 2.9.b – Distribution de la fréquence saisonnière de l'épaisseur optique en aérosol à 500 nm et du coefficient d'Angström à Dunhuang, Chine [Wang et al., 2004].

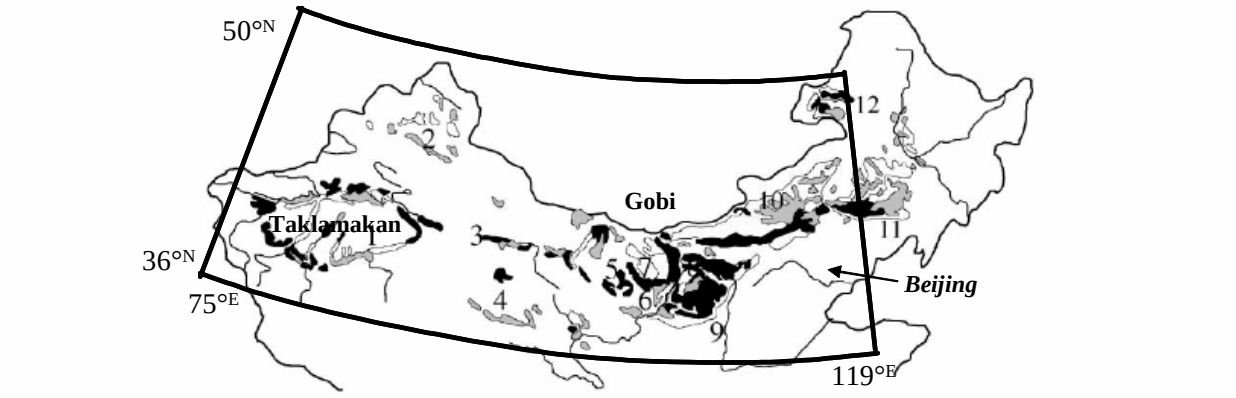
Ces différentes approches de fréquences de tempêtes montrent qu'il est pertinent de chercher à :

- d'une part, tenir compte des conditions d'enneigement dans la cartographie des sols, ce que nous ferons avec l'hypothèse évoquée précédemment: pas d'émission d'aérosol sur les sols réputés enneigés.
- d'autre part, de valider celle-ci avec des tests reposant sur des tempêtes survenues au printemps. C'est ce que nous ferons en utilisant des données de mesures relatives aux printemps 1998, 2002 et 2005.

2.2.2 – Principes de construction et éléments du cadastre d'émission éolienne

- Caractéristiques spatiales du cadastre

Le cadastre des zones sources s'appuie sur les caractéristiques du cadastre MB95 employé en Afrique. Le cadastre africain était discrétisé à l'échelle $1° \times 1°$, par conséquent nous avons conservé une résolution spatiale de $1° \times 1°$ pour notre carte. Il eut été vain, et pour tout dire irréaliste vue notre approche, de chercher une transposition à une échelle plus fine des données globales employées dans la zone asiatique.



The distribution map of desertified lands and desert in Northern China. ■ Severely desertified; ▣ Moderately desertified; ▢ Slightly desertified; ▨ River; 1. Taklimakan Desert; 2. Kurban Tunggut Desert; 3. Kumtag Desert; 4. Qaidam Basin Desert; 5. Badain Jaran Desert; 6. Tengger Desert; 7. Ulan Buh Desert; 8. Qubqi Desert; 9. Mu Us Desert; 10. Otindag Desert; 11. Horqin Desert; 12. Hulun Buir Desert.

Figure 2.10 – Zone géographique recouverte par le cadastre d'émission, fond de carte de [Zhenghu et al., 2001] employant la même légende que la Figure 2.4.

Notre cadastre se doit d'englober les zones désertiques identifiées au paragraphe précédent. Nous avons choisi une couverture géographique comprise entre un angle SW de coordonnées 36°N, 75°E et un angle NE en 50°N, 119°E soit une spatialisation des propriétés réparties sur 45° en longitude par 15° en latitude, c'est-à-dire sur 675 cellules de $1° \times 1°$. La *figure 2.10* illustre cette couverture géographique sur fond des zones désertiques de Zhenghu et al.[2001]. 11 déserts sur les 12 répertoriés sont parfaitement englobés, dont bien sûr les déserts de Gobi et du Taklamakan. La surface couverte par le désert de Horquin n'est prise en compte que partiellement, une extension du cadastre dans cette direction est certainement nécessaire.

Suivant la méthode MB95, chaque cellule du cadastre se voit attribuer les informations suivantes selon le format:

latitude	longitude	type du sol « n »	proportion P_n du type de sol « n » dans cette cellule	rugosité lisse du sol « n »	rugosité du sol « n »	érodabilité de cette cellule	[5]…
(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(…)

avec

(1) Latitude (X) de la cellule, comprise entre 36 et 50 (degrés Nord) inclus

(2) Longitude (Y) de la cellule, comprise entre 75 et 119 (degrés Est) inclus

(3) Le type de sol numéro « n » selon la typologie MB95 rappelée sur le *tableau 2.I* : les indices vont de 1 à 13 (9 exclus) pour les différents types de sol pouvant être émissifs. A quoi on ajoute, à titre indicatif (car non émetteurs), les désignations suivantes des surfaces considérées comme non érodables par nature (en clair, les sols dont le coefficient α est strictement nul) :

- sol 21 : Type montagne, rocher, villes - code M
- sol 22 : Type rivière, eau (non employé dans ce travail) – code R
- sol 23 : Type cultures - code Cult
- sol 24 : Type cultures irriguées – code Ir
- sol 99 : Type océan – code O

Le DPM propose d'inclure jusqu'à 5 types de sols différents (n = 1, 2, …, 5) dans chaque cellule de $1° \times 1°$.

(4) Pourcentage du type de sol « n » dans la cellule considérée.

On a évidemment $\sum_{n=1}^{5} P_n = 100\%$ si différents types de sol sont effectivement attribués à cette cellule (X, Y). Pour ce travail, par manque d'information détaillée sur la surface, nous avons simplifié cette description en allouant un seul type de sol (n =1) à chaque cellule, avec $P_1 = 100\%$. Par suite, chaque type de sol est décrit par 5 scalaires en tout point (X, Y).

(5) Rugosité z_{0s} lisse de ce type de sol

(6) Rugosité macroscopique Z_0

(7) Erodabilité de la cellule, exprimée en pourcentage. C'est un des facteurs clé de ce travail, il est expliqué à part, dans le point suivant.

Expliquons à présent comment nous avons distribué les 13 types des sols érodables et les 4 classes non érodables sur notre carte.

La zone océanique (type 99) existe à l'extrême Ouest du cadastre. Elle est formée par la baie que forme la partie Nord Ouest de la Mer Jaune et qui s'appelle la Mer Bohai.

Pour caractériser les types de sols proprement dits, nous avons employé des cartes d'Atlas minéralogiques telles que, par exemple, celles fournies en ligne par la base de données IIASA-LUC GI (http://www.iiasa.ac.at/Research/LUC/GIS/ soil_types.htm), les cartes de la "Food and Agricultural Organisation" (FAO) disponibles sur http://www.fao.org/ag/agl/swlwpnr/reports/y_ea/z_cn/en/e_soils.htm, ou d'autres documents plus spécifiques: des données cartographies de couverture végétale, de zones agricoles et exploitées, de textures minérales des sols, de différentiation d'érosions éolienne ou pluviale, de pourcentage de pâturage, du relief, de géochimie, etc.

Le travail a consisté à recouper ces différentes informations entre elles afin de choisir le type de sol représentant au mieux chacun des 675 pixels du cadastre. Ce cadastre est visible sur la *figure 2.11*. Les données doivent être actualisées en fonction du couvert neigeux de la période étudiée. Quelques exemples détaillés de cellules du cadastre sont donnés dans le *tableau 2.I.* et illustrent la paramétrisation associée.

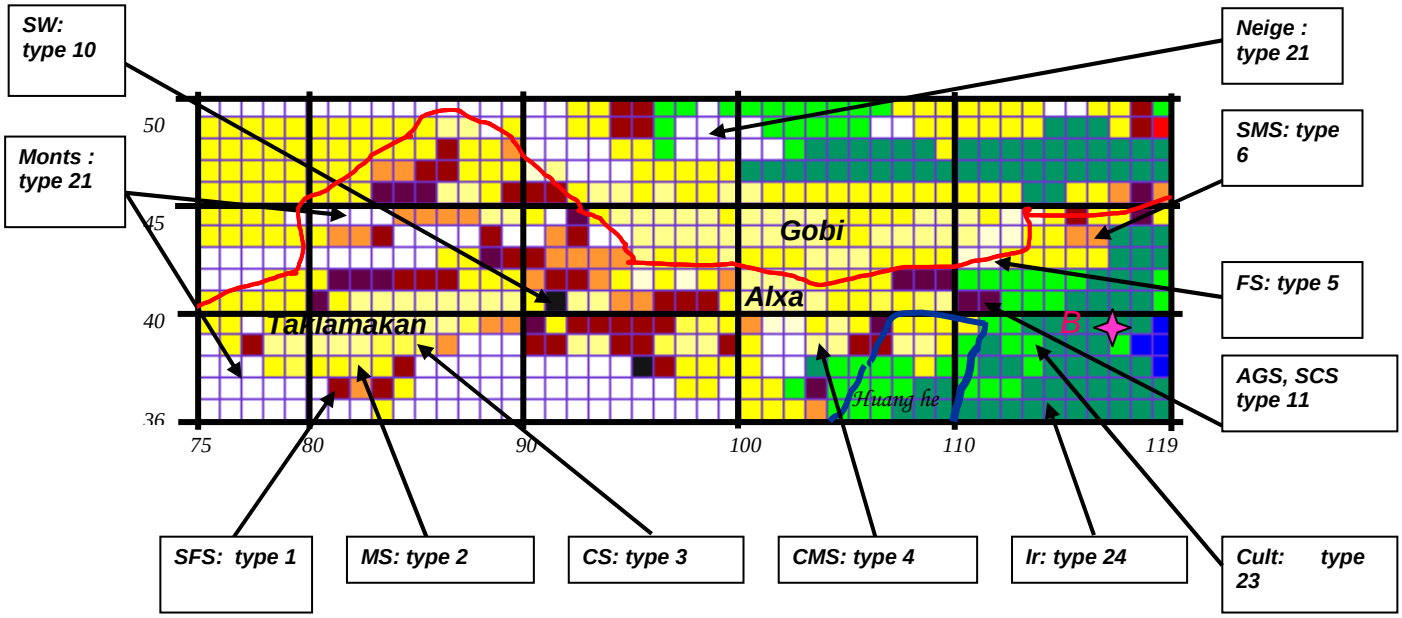


Figure 2.11 – Cadastre des types de sol en Chine et Mongolie pour Avril 1998. Les codes des types de sol sont ceux de la typologie Marticorena and Bergametti [1997] et sont illustrés en quelques endroits. Le trait rouge suit la frontière Nord de la Chine, B(étoile) désigne Beijing et on a tracé approximativement la boucle Nord du fleuve Huang He (en bleu).

Pour conclure, avant d'expliquer le paramètre d'érodabilité, disons que l'essentiel du territoire susceptible d'émettre des aérosols minéraux est une sous-classe de la classe des "sand and loam" (terrains sablonneux et terreaux légers) d'après la classification de texture des sols chinois de Hseung [1984], sous-classe qu'il s'agit donc de déterminer parmi un des types de sol 1 à 8. Ces terrains représentent plus de 95 % des zones émissives [Xuan and Sokolik, 2002].

- Le cas particulier du paramètre d'érodabilité.

L'érodabilité η attribuée à chaque cellule de $1°\times1°$ est définie comme la proportion de sol apte à être érodable à cet endroit, indépendamment du type J de sol caractéristique de cet endroit ($J \in [1,13]$ pour les sols émissifs). Un type J de sol émissif n'a pas d'érodabilité η prédéterminée, cela dépendra de l'endroit (x, y) où se trouve ce sol, sauf bien sûr pour les sols

non émissifs de types 21, 22, 23, 24 et 99 d'érodabilité systématiquement nulle quel que soit le lieu.

L'objet de cette opération est de pondérer, par approximations successives, le flux de saltation total ("total" dans le sens où le terrain serait totalement érodable) de ce type de sol J, noté $G_{TJ}(x,y)$, par l'érodabilité $\eta(x,y)$, comprise en théorie entre 0 et 1, à cet endroit.

On obtiendra pour le type J un flux de saltation $G_J(x,y) = \eta(x,y).G_{TJ}(x,y)$ et ce flux de saltation pondérée $G_J(x,y)$ est multiplié par α_J dans le calcul du flux vertical d'aérosol: $F_J(x,y) = \alpha_J.\eta(x,y).G_{TJ}(x,y)$.

On attribue à chaque pixel du cadastre une érodabilité initiale, déduite de façon empirique des données du satellite POLDER (1^{ere} mission, 1996-97 ; Chazette, comm. Pers.). Un pourcentage $\eta(x,y)$ nul signifie un sol non érodable tandis qu'une érodabilité de 100% représente un lieu totalement mobilisable, ce qui est en toute rigueur impossible.

Nous expliquons maintenant la méthode pratique de mise au point du cadastre.

- Principes du processus itératif de mise au point du cadastre d'émission

Rappelons tout d'abord les paramètres de ce travail :

(1) le coefficient physico-chimique α_J d'efficacité de la conversion du flux G en flux F : il est adapté des valeurs du modèle MB95 validé sur l'Afrique, le présent travail n'a pas contribué à des modifications sensibles de ce coefficient;

(2) le type de sol : cette spéciation est basée dans un premier temps sur la lecture des cartes disponibles;

(3) l'érodabilité de chaque pixel géographique est basée sur la carte de rugosité POLDER. La caractérisation détaillée des points (2) et (3) est la contribution apportée par cette thèse, via la mise au point du cadastre résultant, à la simulation du cycle de l'aérosol désertique en Asie.

Pour établir les 675 érodabilités, et affiner en parallèle la répartition des types de sol sur ces 675 cellules, nous avons procédé à un certain nombre de simulations RAMS. Les produits des simulations ont été comparés à (i) des mesures de terrain, (ii) et à des produits de simulations antérieures réalisées par d'autres équipes, ce qui nous a permis d'ajuster en même temps les paramètres (2) et (3) par itérations successives jusqu'à ce qu'ils fournissent des résultats acceptables. Dans une certaine mesure cette méthode présente les caractéristiques

d'un exercice d'inversion à cela près que le produit final se doit d'être une simulation cohérente du cycle d'aérosol et non pas le cadastre pour lui-même.

Nous nous sommes basés sur les observations et les résultats antérieurs relatifs à deux tempêtes de sable survenues en Chine et Mongolie à la mi-avril 1998 pour bâtir le cadastre correspondant à cette période.

On peut se demander "pourquoi attacher une date au cadastre des propriétés de sol ?" … la réponse est que les types de sols et les érodabilités des cellules seront évidemment indépendants du temps à l'échelle temporelle d'application de ce travail mais le couvert neigeux sera – lui - différent d'une période à l'autre et celui-ci sera toujours superposé au cadastre "de fond".

Nous proposons le détail de ces « tunings » successifs au paragraphe 2.4, mais auparavant, nous présentons une description du modèle mésoéchelle RAMS.

2.3 Les éléments des simulations RAMS

Nous avons utilisé le modèle météorologique mésoéchelle RAMS (*Regional atmospheric Modeling System*), conçu pour des études du système atmosphérique, et notamment utilisé au LaMP, dans ses versions successives, depuis 1995.
Le code RAMS est initialement dû à la collaboration de l'université d'état du Colorado (CSU) et du laboratoire MRC (*Mission Research Corporation*) /ASTeR [Cotton et al., 2003]). Comme ce code est ouvert et adaptable, une large communauté scientifique se l'est approprié et en a aujourd'hui l'usage.

Ce modèle connaît un large spectre d'applications, permettant d'étudier différents types de phénomènes : des processus locaux ou régionaux comme les brises de mer ou de lac [Eastman et al., 1995], les mécanismes des précipitations lors de mousson sur le Kenya [Mukabana et Pielke, 1996] ou des orages de pré-mousson à Calcutta [Mukhopadhyay, 2004], des processus physiques nuageux [Heckman et Cotton, 1993], les caractéristiques optiques des nuages [Duda et al., 1996], des études climatiques sur la glace [Liston et Pielke, 2001], et des études de prévision météorologique (étude de cyclone, [Eastman, 1995]). Comme on le voit, RAMS est adaptable à différents phénomènes d'échelles diverses et à tous lieux géographiques d'étude. Le modèle *RAMS/CFORS* appliqué en Asie par Uno et al. [2005] est une illustration d'application méso-échelle aux dimensions de l'Asie de l'Est.

Nous utilisions la version 3b au moment des études des événements de 1998 et 2002 et avons transposé ensuite nos études sur la version parallélisée 4.3.0 (simulations relatives à 2005). La version 4.3.0 contient des paramétrisations plus complètes et sa parallélisation permet une économie substantielle de temps de calcul par rapport à la version 3b.

Dans le cadre du présent travail, RAMS gère les éléments météorologiques suivants:

- dynamique atmosphérique : lois générales de conservation des modèles météorologiques (conservation de la quantité de mouvement, conservation de l'énergie totale incluant les équations de la chaleur et de l'humidité spécifique, conservation de la masse, équations d'état de l'air sec et de l'air humide) qui traduisent les processus atmosphériques. A l'inverse des GCM (*Global Circulation Model*), un modèle mésoéchelle tel que RAMS ne peut négliger les processus de petites échelles ayant un impact sur les échelles régionales. RAMS est donc non-hydrostatique (prise en compte des mouvements atmosphériques verticaux) et ses équations sont pronostiques.

Les variables et les termes sources et puits du système d'équations sont la température (T), l'humidité spécifique (q), les composantes du vent (u,v,w), la masse volumique de l'air (ρ), la pression (P), le terme de force de frottement (Fh), le terme d'apport massique de chaleur sensible (Q) et enfin, le terme d'apport massique de vapeur d'eau ou chaleur latente (Q').

- les paramétrisations : calculs des effets statistiques des transferts énergétiques qu'il est impossible de définir de façon déterministe et d'attribuer individuellement à chaque élément du modèle: la *figure 2.12* récapitule schématiquement ces paramétrisations.

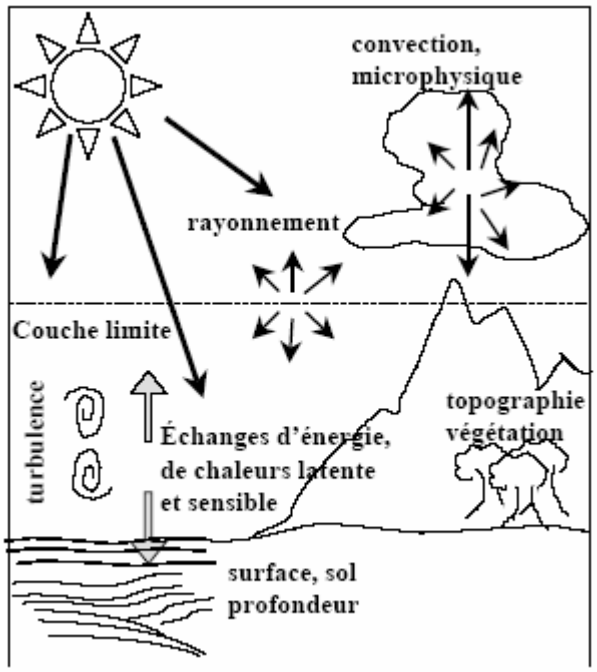


Figure 2.12 – Schéma récapitulatif des paramétrisations RAMS, [Minvielle, 2003]

Les processus de rayonnement sont décrits par l'équation du transfert radiatif qui traduit les phénomènes d'absorption, de transmission et de diffusion par les différents éléments tels que le sol, l'atmosphère, les nuages et les particules dans l'atmosphère (on a vu plus haut que le modèle radiatif EC3 couplé à RAMS en tient compte). Les échanges entre le sol et les premières couches de l'atmosphère (dont la CLS): flux de rayonnement, de chaleur latente et sensible sont pris en compte, de même que les flux dans le sol (chaleur et eau).

- les résolutions horizontales, verticales et temporelles:
  - Maillage horizontal: la structure de la grille utilisée est de type Arakawa-C [Mesinger and Arakawa, 1976]. La plupart des variables sont calculées au centre des mailles ($\Delta x1/2$, $\Delta y1/2$, $\Delta z1/2$) et les composantes cartésiennes de la vitesse sont calculées sur les faces des mailles. La projection de la grille horizontale est stéréo-polaire, et le pôle de projection est situé au centre du domaine étudié. Cette méthode minimise les distorsions géométriques du domaine lors des projections.
  - Maillage vertical: la discrétisation des 30 niveaux répartis sur 22 km d'altitude utilisés par RAMS suit une loi en progression géométrique telle que les altitudes ainsi calculées proposent un « feuilletage » de niveaux qui épouse le profil réel z_g

du relief mais avec des niveaux d'autant plus nombreux que l'on se rapproche du sol (*figure 2.13*). On obtient ainsi 10 niveaux réservés pour une résolution fine dans la couche entre 0 et 1200 m au dessus du sol de coordonnées horizontales (x, y), soit au niveau de la couche limite, lieu des échanges atmosphériques les plus complexes.

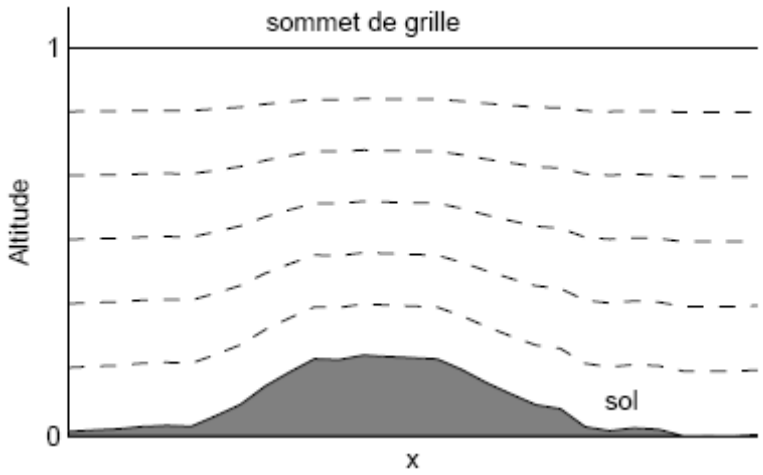


Figure 2.13 – Schéma de principe des niveaux RAMS, [Minvielle, 2003]. L'altitude normalisée à 1 correspond au dernier niveau (22 km). Les niveaux ne sont pas équidistants mais suivent une progression géométrique entre le profil du relief et le dernier niveau fixé.

- La topographie et la végétation sont issues de la base USGS à 30'' de résolution, puis interpolées, à l'aide d'une projection stéréographique polaire, à la résolution spatiale de la grille par un module prévu à cet effet dans le modèle.

- les conditions initiales et de forçage :

  - Initialisation du modèle : On prescrit les valeurs des variables atmosphériques en chaque point du maillage tridimensionnel. Ces données d'initialisation sont fournies par les analyses du Centre Européen de Météorologie de Reading en Angleterre, *European Center for Medium-range Weather Forecasting* (ECMWF ou CEPMMTP en français). Ces données, choisies sur la zone spatiale d'étude, sont définies sur des grilles de maille carrée de dimension 1° ou 0.5° à des niveaux de pressions fixés. Un module spécial de RAMS [Tremback, 1990] sert à lire ces analyses, puis à les interpoler à la résolution de la grille du modèle créant des jeux de données en coordonnées stéréopolaires. Verticalement, les données sont interpolées de façon linéaire.

  - Forçage du modèle: les données ECMWF servent ensuite à forcer le modèle (*nudging* en anglais) toutes les 6 heures aux limites latérales et au

sommet du domaine simulé. Cela est nécessaire à cause de la nature fortement non-linéaire des équations de la dynamique atmosphérique. Cette non-linéarité est source d'instabilité et de divergence des calculs. Pour éviter cet inconvénient, la solution consiste à forcer les résultats vers les données d'analyse de l'ECMWF. Cela est réalisé dans RAMS par un schéma utilisant une fonction de poids prise en compte dans l'évolution temporelle des variables. Il est possible de forcer les résultats soit aux limites soit au sein du modèle, soit les deux. Ici, nous ne forçons qu'aux limites afin de laisser libre la physique du modèle.

- les conditions aux limites retenues: les conditions aux frontières latérales sont des conditions radiatives du type Klemp et Wihelmson [1978]. Les conditions imposées au sommet (c'est-à-dire au 30^{e} niveau RAMS) sont gérées par la conjonction d'un schéma mettant en place un "couvercle" rigide (vitesse verticale nulle) et d'un schéma radiatif d'ondes de gravité de Klemp et Durran [1983]. Les conditions limites de surface dérivent des variables d'état et des grandeurs dynamiques/énergétiques qui caractérisent l'état du sol : La température et l'humidité spécifique sont calculées par les paramétrisations du sol et les types de couvert [Tremback et Kessler, 1985]. Ces valeurs de température et d'humidité servent ensuite au calcul des flux de chaleur dans la paramétrisation de la couche de surface [Louis, 1979].

- Distribution spectrale des aérosols: le modèle de soulèvement MB95 ne préconise pas a priori les tailles des particules mises en suspension. Une fois la vitesse de friction seuil dépassée, une masse donnée d'aérosols est injectée dans l'atmosphère. Il est nécessaire de décrire la distribution en taille de ces aérosols. La maîtrise d'une description granulométrique des particules minérales est particulièrement utile dans une démarche de modélisation, en particulier si cette modélisation doit participer à une compréhension des effets radiatifs des aérosols ou/et à une analyse détaillée de leur participation aux phénomènes chimiques atmosphériques [Zhang and Carmichaël, 1999 ; Breon et al., 2002]. Les flux de masse issus du DPM sont redistribuées sur un spectre discret de 20 classes comprises entre 0.1 µm et 13 µm. Le spectre a trois composantes lognormales en masse autour des rayons : 0.75 µm, 3.35 µm et 7.1 µm, avec des déviations standard logarithmiques respectives de 1.7, 1.6 et 1.5 µm. La forme initiale du

spectre est issue des résultats d'Alfaro et Gomes [2001]. Cette description spectrale des particules permet de calculer avec précision leur vitesse de sédimentation. Nous assignons par le calcul une vitesse de chute spécifique à chacune des classes de taille. Connaissant la masse volumique de l'aérosol, estimée à 2650 kg m^{-3} [*Marticorena and Bergametti*, 1995], on peut déterminer le vitesse de chute de chaque particule (Seinfeld, 1986 ; Cautenet et al, 2000). On peut ainsi calculer un flux de dépôt sec associé à chaque taille d'aérosol. Les dépôts humides (nuages et précipitations) sont traités suivant une méthode décrite dans Cautenet and Lefeivre [1994].

- les émissions et dépôts d'aérosols désertiques et anthropiques seront décrits au chapitre 4.

2.4 Eléments détaillés de la mise au point du cadastre sur la base des données d'Avril 1998

Nous détaillons dans ce paragraphe la phase pratique de mise en application, à l'aide de l'outil RAMS, des principes de mise au point du cadastre d'Avril 1998 tels qu'annoncés au 2.3.

Les intenses épisodes de soulèvement et de transport du printemps 1998 ont été décrits par plusieurs équipes et fait l'objet de nombreuses publications. Pour exploiter l'événement des 14-15 avril (1er événement) et celui des 18-20 avril (second événement), nous avons répété des simulations RAMS sur une période de 11 jours pleins, du 11 au 21 avril. Nos simulations considèrent des champs de concentration en aérosol nuls à l'instant initial. Par conséquent, on calcule les champs en débutant les simulations dans les 48 à 72 heures précédant la période intéressant nos tests afin d' «oublier» la condition initiale (spin up).

Le domaine de modélisation englobe largement notre zone source. Il couvre une aire géographique de 4400 km (Est-Ouest) par 2200 km (Nord-Sud) centrée sur le pôle de projection (100°E, 40°N), avec une résolution horizontale de 100×100 km^2. Pour faciliter la lecture des cartes de résultats, en plus de la ligne de côte maritime à l'Est, nous avons tracé la ligne d'altitude 2000 m, ce qui permet d'identifier aisément le plateau du Tibet au Sud de la zone de simulation ainsi que les chaînes de montagne à l'Ouest, au Nord et au Nord Ouest.

Les premiers essais d'érodabilité utilisaient une érodabilité par cellule comprise entre 0% et 25%. La procédure de « tuning » liée aux répétitions des simulations nous a fait tendre vers un ajustement de ce paramètre finalement compris entre 0% et 15%.

Regardons la *figure 2.14* des résultats de la simulation du 1er épisode en champs horizontaux de concentration en aérosol minéral au niveau du sol.

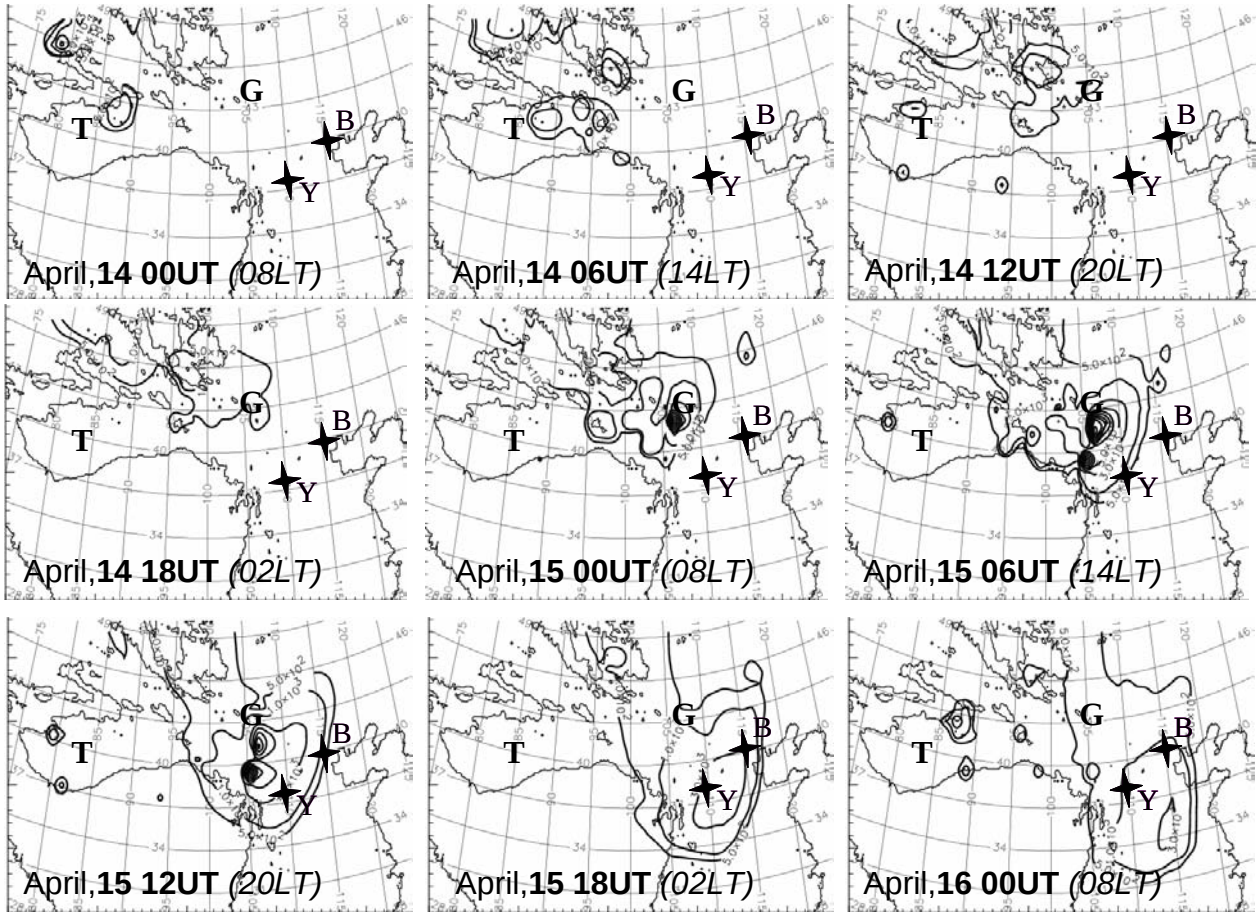


Figure 2.14 - Isocontours des concentrations en aérosol minéral au niveau du sol, obtenues par simulation à échelle de résolution horizontale de 100×100 km^2 et basée sur le cadastre d'Avril 1998. Extraits du 14 au 16 avril 1998.UT (Universal Time), ajouter environ 8 heures pour LT (local Time,i.e. Beijing Standard Time)
B: Beijing; Y: Yulin; G: Gobi; T: Taklamakan
Isocontours (×10^{3}µg m^{-3}): 0.5, 1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 20, 25, 30

Il apparaît manifestement que les zones émissives sont caractérisées par des concentrations en aérosol d'un ordre de grandeur réaliste, c'est-à-dire de plusieurs dizaines de milliers de microgrammes par mètre cube d'air. On peut localiser l'origine de ces

soulèvements dans la région Sud du Gobi le 15 Avril, or l' « activation » de ces déserts (en particulier le Badai-Jaran) à la fin du passage vers le Sud Est d'une dépression atmosphérique correspond bien au rapport qui en est fait par Sun et al., [2000].

Le second événement d'Avril 1998 (*figure 2.15*) trouve son origine le 18 avril, d'une part dans le Nord Ouest du Xinjiang (NO de la Chine): le bassin du Junggar Pendi contenant le désert du Gurbantunggut, et d'autre part (avec un décalage de 6 heures) dans le Taklamakan.

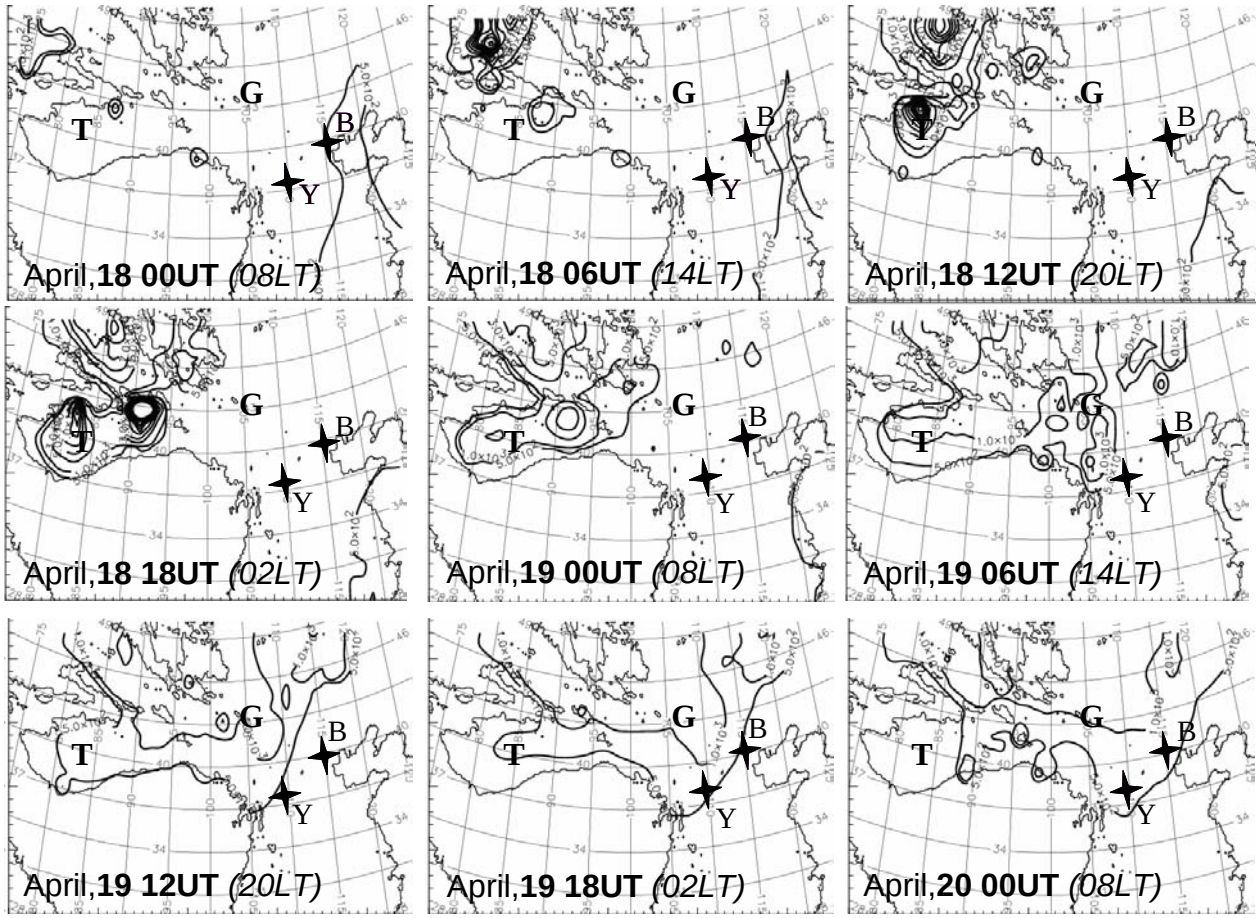


Figure 2.15 – Idem Fig. 2.14 - Extraits des simulations du 18 au 20 avril 1998.

Le modèle montre un très fort soulèvement entre la bordure Nord-Est du Taklamakan et la frange Sud-Ouest du Gobi aux toutes premières heures du 19 Avril en heure locale. Un déplacement vers l'Est d'un front dépressionnaire à cette période et pendant les heures et les jours suivants a été mis en évidence par des observations, en particulier des images satellites [Husar et al., 2001], et simulé [Uno et al., 2001]. Le transport jusqu'aux cotes californiennes des poussières ainsi mises en suspension, entre le 20 et le 24 Avril, a également été observé et analysé.

Plus localement, nous avons analysé l'efficacité du cadastre de sol à produire une quantité d'aérosol conforme à ce qui a été transporté jusque sur la région de Beijing. Les résultats du modèle présentés sur la *figure 2.16* recouvrent les deux épisodes et présentent un pic non significatif le 12 Avril (probablement un artéfact numérique lié à l'initialisation des champs de concentration débutée le 11). En revanche, les résultats obtenus pour la période débutant le 15 Avril à 18 TU (soit à 02 LT le 16), c'est-à-dire au moment réel où la tempête de sable est arrivée sur Beijing, sont en parfaite concordance avec ceux publiés par Sun et al., [2000].

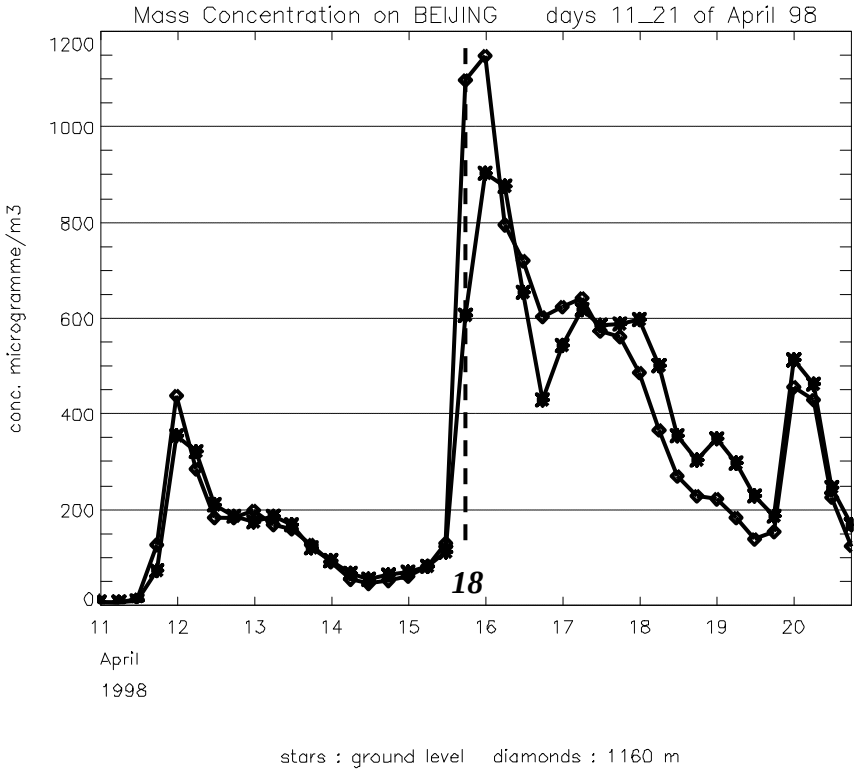


Figure 2.16 –Concentrations en aérosol minéral (µg.m^{-3}) sur la région de Beijing, obtenues par simulation à l'échelle de 100×100 km^2, à partir du cadastre d'Avril 1998.
Etoiles : au niveau du sol; losanges: 1160 m d'altitude par rapport au sol. Echelle de temps UT, la ligne verticale en pointillés rappelle l'heure à partir de laquelle la tempête de sable est observée sur Beijing [Sun et al., 2000].

Le maximum de concentration calculé pour le 16 Avril à 00 TU atteint 900 µg.m^{-3} au niveau du sol, et, pour information, plus de 1100 µg.m^{-3} à 1.2 km d'altitude au dessus du niveau du sol. Une concentration moyenne totale de particules en suspension (TSP, *Total Suspended Particles*) d'environ 940 µg.m^{-3} a été observée sur Beijing le 16 avril par les services météorologiques locaux [Sun et al., 2000], entre 02:00 et 15:00. Cette valeur ne doit

certainement pas être intégralement interprétée en termes d'aérosol minéral, mais elle nous fournit néanmoins une comparaison à l'appui de nos estimations. La courbe fait aussi apparaître le second épisode de poussières désertique transporté jusqu'à Beijing.

Au niveau des zones sources, nous avons comparé ces résultats avec les données du spectrophotomètre AERONET de Dalanzadgab, ville sise au Sud de la Mongolie. La *figure 2.17.a* montre la charge colonne, intégrée sur les 30 niveaux RAMS, en aérosol minéral (en $g.m^{-2}$) calculée à Dalanzadgab ainsi qu'en (92°E, 43°N) et la compare avec les données d'épaisseur optiques (*figure 2.17.b*) pour le second épisode (il n'y a pas d'enregistrement complet du premier épisode).

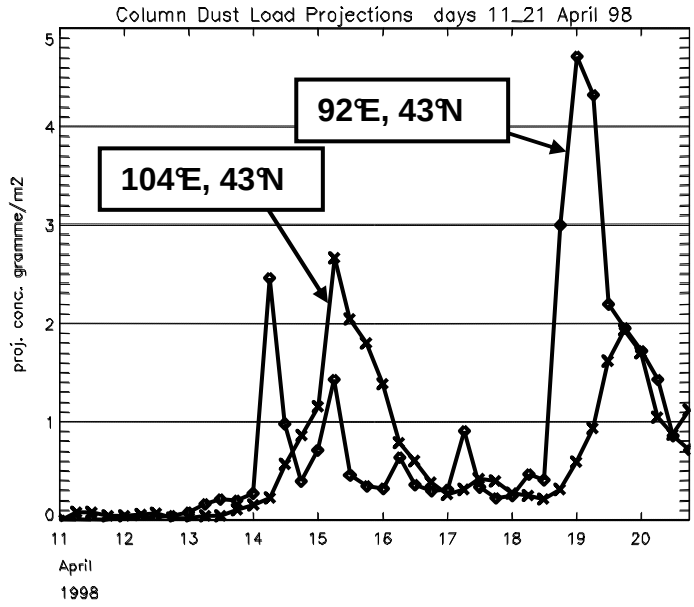


Figure 2.17.a – Simulation de la charge colonne verticale intégrée sur tous les niveaux RAMS ($g.m^{-2}$), calculée en un point de zone source (92E, 43N) ainsi que sur le secteur de Dalangzadgab (104E, 43N)

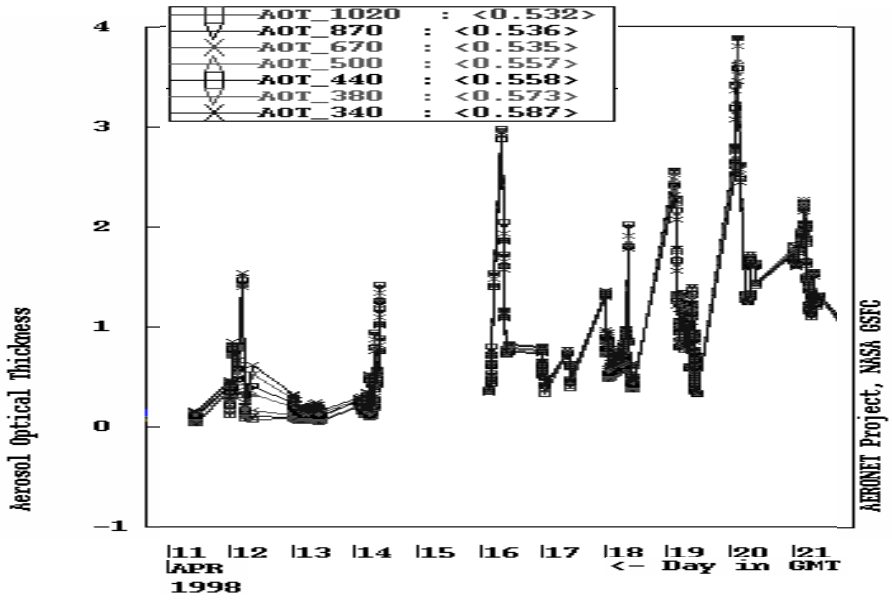


Figure 2.17.b – Mesures d'épaisseurs optiques (AOT) à Dalanzadbag, du 11 au 21 Avril, 1998.

Le point géographique de coordonnées (92°E, 43°N) a été choisi comme cellule test car il apparaît comme étant situé au cœur de la zone d'émission la plus intense pour le second épisode de tempête de sable. Le spectromètre de Dalanzadgab (104°E, 43°N) est situé à la même latitude que notre point source mais décalé à plus de 1000 km vers l'Est, ce qui est intéressant car cela situe ces mesures sur la trajectoire du panache de poussière. Le décalage temporel-des résultats de simulation entre les deux points tests est parfaitement conforme aux observations, et ce pour les deux épisodes. On constate que la charge de poussière calculée comme étant émise plus globalement dans un quadrilatère (90-95°E, 40-44°N) le 18 Avril vers 18:00 TU est bien retrouvée sur le spectre AOT entre les 19 et 21 Avril, aussi bien en terme chronologique qu'en terme radiatif puisque les courbes d'AOT relatives aux diverses longueurs d'onde sont quasiment confondues, ce qui est typique d'un épisode d'aérosol minéral. Plus quantitativement, sachant que le coefficient d'extinction (section efficace) de l'aérosol minéral est de l'ordre de 1 $m^2.g^{-1}$ dans le visible [Chiapello et al., 1999 ; Alfaro et al., 2003], la charge colonne simulée pour le second épisode dépassant les 1.5 $g.m^{-2}$, cela correspond à une épaisseur optique de l'ordre de 1.5 ce qui tend bien vers l'épaisseur optique moyenne enregistrée par le spectrophotomètre.

Toujours en relation avec le second épisode, In et Park [2002] ont publié des mesures en TSP pour la Corée du Sud. Bien qu'en dehors de notre zone de simulation, ce pays reste

proche de la zone Nord Est du domaine. Nos résultats donnent des concentrations au sol comprises entre 350 et 550 $\mu g.m^{-3}$ le 19 avril. Les mesures de terrain sont au plus de 400 $\mu g.m^{-3}$ vers Pusan et valent 200 $\mu g.m^{-3}$ à Séoul. Enfin, afin de vérifier la distribution verticale des aérosols, nous avons considéré les observations lidar en Chine et en Corée [Murayama et al., 2001] et constaté l'accord de celles-ci avec notre modèle distribuant le panache entre le niveau de la mer et environ 3000 m d'altitude.

En conclusion, le cadastre d'Avril 1998, relatif à la distribution des différents types de sol retenus, résultant de ce processus d'étalonnage sur les données de 1998 est proposé *figure 2.11*, et la carte de ce cadastre donnant, en parallèle, les érodabilités des 675 pixels du cadastre – comprises entre 0% et 15% - est détaillé dans notre publication rapportée au chapitre 3, paragraphe 3.1.3, (fig.1(a) – infra).

2.5 Mise en évidence d'épisodes de tempêtes de poussières à l'aide des visibilités observées aux stations.

Nous souhaitions disposer d'une donnée supplémentaire permettant d'identifier les tempêtes de sable sur le continent asiatique à titre qualitatif ou semi quantitatif. Nous avons choisi d'exploiter dans ce but les données de visibilités de terrain fournies par l'ECMWF. Cette méthode a déjà été employée par ailleurs, par exemple en Afrique [Legrand et al., 1985].

Dans le monde entier, des stations d'observations sont équipées pour mesurer et enregistrer de façon automatique les données météorologiques locales, en particulier en Chine, Corée du Sud et Japon. On peut dénombrer plus de 1500 stations de mesures sur le contient asiatique, mais toutes ces stations ne sont pas forcément opérationnelles au même instant. A ce propos, bien que la fréquence des tempêtes de sables provenant de la Mongolie soit importante (~30% ±10% des événements survenus durant le dernier demi-siècle [Zhang et al., 2003], on n'y dispose malheureusement pas de mesures de visibilités automatisées et calibrées, les observations y sont encore visuelles et, par conséquent, quelque peu subjectives.

Certains rapports factuels peuvent se limiter à signaler la présence d'une tempête par une baisse locale de visibilité au regard de la valeur moyenne de visibilité en ce lieu. Par exemple, le site grand public http://www.duststorm.com.cn/english/show.asp?ID=501 témoigne des survenues de tempêtes de sable en relation directe aux visibilités et aux vitesses de vents: "Dust storm occurred in Dongsu qi, Xi linguole of Inner Mongolia from noon to afternoon on May

18th (2004). Among them, visibility of Dongsu qi is 100m and wind speed is 20m/s; Visibility of Aqi is 30m and wind speed is 24m/s; Visibility of Xilin guole is 900m and wind speed is 24m/s. Visibility of Xiwu is 400m and wind speed is 20m/s. Visibility of Dongwu is 800m and wind speed is 21m/s; Visibility of Naren is 30m and wind speed is 29m/s.". Dans cet ordre d'idée, Shao et Wang [2003] classifient les événements de poussières minérales en quatre catégories de la visibilité horizontale correspondante: (1) *dust-in-suspension*; (2) *blowing dust*; (3) *slight to moderate sand-dust storm* et (4) *severe sand-dust storm*.

De façon plus générale et plus approfondie, la relation de cause à effet entre la teneur en particules en suspension et la baisse de visibilité peut être établie empiriquement. Kwung et al. [2001] associent la chute de la moyenne horaire de visibilité, de 61.7 km à 1.9 km, à la hausse, dans le même temps, de la concentration moyenne en PM10 de 32.9 à 601.8 $\mu g.m^{-3}$, au printemps 2000, à Kwangju (Corée du Sud). Shao et al., [2003] proposent d'établir une conversion quantitative de la distance de visibilité D_v (en km) en concentration volumique d'aérosol C ($\mu g.m^{-3}$) pour l'Asie. Les formules de conversion empiriques s'appuient sur une analyse statistique (régression avec méthode des moindres carrés) de mesures de TSP de surface corrélées aux visibilités sur les sites de mesure : $C = 3802.29 D_v^{-0.84}$ (1) et $C = \exp(-0.11 D_v + 7.62)$ (2). La formule (1) semblerait, d'après les auteurs, plus adaptée aux faibles visibilités (donc aux tempêtes les plus chargées en poussières) avec un coefficient de corrélation de 0.68 tandis que (2) est associée à de faibles concentrations, avec un coefficient de corrélation de 0.72. Ce principe de conversion "Visibilité $\leftrightarrow$ Concentration" est extrêmement séduisant mais, au vu des coefficients de corrélation, ne donnent guère plus que des ordres de grandeurs.

Grâce à des mesures automatisées de visibilités en deux sites en bordure du désert du Taklamakan, Abe et al., [2005] proposent des formules de conversion de visibilité en concentration en nombre/volume, puis en masse/volume à l'aide d'une masse volumique de 1650 $kg.m^{-3}$ (la densité du quartz…). Ces conversions sont établies sur 6 classes de tailles à partir de 0,3 µm de diamètre. Sur la gamme 2-5 µm de diamètre, ils calculent (à partir d'une quinzaine de points échantillonnés pour des visibilités comprises entre 1300m et 3000m) une concentration n en nombre/litre selon: $n = 3.19356 \times 10^{-6} v^3 - 0.0207191 v^2 + 35.39 v - 4392$ où v est la visibilité en mètres, et ce avec une corrélation de $r^2 = 0.9826$. Ces résultats sont très intéressants s'ils s'avèrent généralisables à d'autres aires géographiques, en particulier aux déserts de Gobi.

Nous ne disposons pas des TSP de surface (à raison d'une mesure toutes les 3 heures) sur l'Asie, et quitte à se satisfaire d'un ordre de grandeur indiquant si oui ou non le passage d'événement de poussière à pu avoir lieu en tel ou tel lieu, nous avons choisi de produire directement une cartographie des variations relatives de visibilité en Asie. Cette cartographie devrait être analogue à celle des isocontours de concentrations en surface calculées par RAMS. En reliant graphiquement entre eux les lieux où la visibilité chute au même instant, on devrait tracer par là même un contour assez fidèle de la progression du front de poussières en suspension.

Pour construire nos cartes d'isocontours de visibilité, nous sélectionnons dans la liste des stations météorologiques situées en Asie (171 stations localisées dans l'aire de l'étude Chine-Mongolie en 2002, 950 stations pour l'étude Chine-Mongolie-Corée-Japon en 2005), celles qui fournissent des visibilités toutes les 3 ou 6 heures. En effet, un délai plus long entre deux mesures rend inexploitables les données de la station en question au regard de la brièveté de certains épisodes de poussières. Par ailleurs, par défiance envers l'ensemble de leurs mesures, nous éliminons les stations qui enregistrent entre autre des vents supérieurs 60 $m.s^{-1}$ (des vents supérieurs à 216 $km.h^{-1}$ …) et pour les autres stations "utilisables" nous extrayons les vecteurs vitesse de vent pour obtenir une idée des vents de surface. De façon systématique nous éliminons de nos calculs toute station dont au moins une mesure fournit des résultats d'évidence faux (signes aberrants, visibilités non définies, etc.). A l'issue de ce tri, 137 stations servent à tracer les cartes de 2002 et 732 stations sont conservées pour l'analyse des visibilités d'Avril-Mai 2005. Les stations retenues se distribuent de façon inhomogène sur le territoire étudié, nous aurons une indication de leurs situations – en plus de l'information intrinsèque que cela apporte sur la météorologie locale - en traçant les vecteurs vitesse de vent qu'elles enregistrent.

Comme les stations, en Mongolie en particulier du fait des observations "à l'oeil", ne sont pas étalonnées sur les mêmes distances de visibilité par temps clair, nous recherchons la visibilité maximale en chaque station sur une période d'au moins une semaine, ce qui inclut nécessairement une période d'atmosphère dégagée (au printemps du moins). Notre programme divise en chaque station les visibilités horaires par sa propre visibilité maximale, ce qui donne une visibilité relative comprise entre 0 (visibilité nulle: tempête de poussière intense) et 1 (visibilité maximale: atmosphère dégagée) caractéristique de chaque station. Nous traçons donc finalement des cartes d'isocontours de variation simultanée (interpolation cubique) de visibilités relatives.

Nous lisons le total des précipitations et calculons l'humidité relative (RH) à la station pour diagnostiquer la présence de pluie ou de brouillards, météores qui faussent l'interprétation d'une baisse de visibilité en terme uniquement de poussières en suspension. Les mesures de température de vapeur sèche (T_s) et de température de rosée (T_r) permettent de calculer RH par la variante de la formule de Magnus:

$$RH = 100 \frac{10^{-\frac{2937.4}{T_r} - 4.9283 \log T_r + 23.5518}}{10^{-\frac{2937.4}{T_s} - 4.9283 \log T_s + 23.5518}}$$

Les isocontours des zones de pluie associés aux isocontours des zones d'humidité relative supérieures à 80 % nous indiquent les régions où la baisse significative de visibilité ne peut être due de façon certaine à un transport d'aérosol.

Ce programme d'interprétation des variations de visibilité sera appliqué dans l'analyse des évènements des printemps 2002 et 2005.

Chapitre 3
Validation et application du cadastre d'émission éolienne d'aérosols désertiques: modélisations de transports de poussières issues de Chine et Mongolie

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord la validation du cadastre d'émission éolien dont la mise au point a été présentée au chapitre 2. Cette première partie reprend les méthodes et rappelle les résultats d'un article intitulé « Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China » publié dans Atmospheric Environment. Cet article mentionnait les mises au point décrites au chapitre 2, mais sans les détailler. La seconde partie est consacrée à l'analyse détaillée de la simulation d'un événement d'aérosol désertique survenu au printemps 2005 et ayant concerné un large domaine de l'Est asiatique. Les objectifs de cette seconde partie consistent en, (i) l'analyse des possibilités et des limites du modèle, (ii) l'illustration de l'utilisation de données d'origine et de qualité diverses propres à l'aérosol minéral oriental, (iii) poursuivre la validation du modèle, et enfin, (iiii) préparer les conditions de la prise en compte additionnelle d'aérosols anthropiques (chapitre 4).

3.1 Validation de la source d'aérosol minéral

3.1.1 – Contexte de l'étude l'événement d'Avril 2002

Une vaste campagne de mesure et de caractérisation des aérosols, dénommée ACE-ASIA (http://saga.pmel.noaa.gov/Field/aceasia/), a été menée en 2001 sur le continent Est Asiatique. La phase intensive de mesures s'est déroulée du 30 mars au 04 mai. Les diverses études ont été menées grâce à des appareillages embarqués sur des navires, des avions et grâce à des installations de mesure au sol. Au printemps 2002, des mesures concernant les aérosols désertiques ont été effectuées sur le site expérimental ACE-ASIA de Zhenbeitai (109°4 E, 38°1 N, 1100 m d'altitude), environ 10 km au Nord de la ville de Yulin, ville elle-même située à environ 600 km à l'Ouest de Beijing [Alfaro et al., 2003]. Ce site expérimental est localisé aux débouchés Est et Sud Est de la marge Sud du « grand Gobi » incluant en particulier les déserts de Mu Us, de Hobq et le plateau d'Alxa (ou Alashan).

Durant le printemps 2002, une caractérisation détaillée des propriétés physico-chimiques des aérosols minéraux collectés à 10 m de hauteur sur la tour de mesure a été menée à bien [Alfaro et al., 2003]. C'est dans le cadre de cette veille en continu du site de Zhenbeitai que nous avons pu disposer de mesures relatives à un épisode de transport de poussières enregistré sur site le 14 Avril 2002 au matin (en temps local).

3.1.2 – Objectifs atteints par l'étude de la simulation RAMS de l'événement d'Avril 2002

La synthèse de notre travail relatif à l'adaptation des états de surface et aux résultats des simulations RAMS a fait l'objet d'une publication jointe à ce paragraphe [Lasserre et al, 2005]. Nous avons utilisé les résultats des mesures inédites opérées sur le site de Yulin (Zhenbeitai) afin de valider le cadastre de base dont la méthode d'élaboration a été détaillée au chapitre 2. Nous avons ainsi rempli les objectifs suivants :

1. Valider la mise au point de la source d'aérosol minérale en adaptant le cadastre de base des érodabilités associé à celui des types de sol et ceci aux conditions d'enneigement de la mi-Avril 2002 : par la lecture des cartes de la NOAA (http://www.ssd.noaa.gov/PS/SNOW), nous avons constaté en particulier le fort enneigement de la zone Nord Est du cadastre, à la différence de la situation printanière de 1998.

2. Comparer, à la fois en terme de quantités (par l'estimation de concentrations volumiques en $\mu g.m^{-3}$) et en terme de correspondance temporelle, les concentrations d'aérosol minéral simulées et transportées par la simulation RAMS jusqu'à Yulin avec les concentrations qui y furent effectivement mesurées: les observations donnent une concentration maximale de 4650 $\mu g.m^{-3}$ le 14 Avril à 07:15 TL (Temps Local) et nous obtenons un pic sur zone (avec une résolution RAMS en mailles de 25×25 km^2) de 3750 $\mu g.m^{-3}$ ce 14 Avril environ 5 heures plus tôt … ce qui est très proche de la valeur expérimentale dans le domaine d'incertitude inhérent à ce type d'exercice.

3. Cerner l'aire géographique où cet épisode de tempête a dû être initié en quantifiant et comparant entre eux les flux d'émission en zone source: la zone du plateau de l'Alxa s'est révélée la plus émettrice comme le supposaient Alfaro et al (2004) d'après l'analyse de la composition minéralogique des poussières recueillies. Le maximum d'intensité de flux y est calculé à 2.1 $mg.m^{-2}.s^{-1}$, ce qui le situe dans le domaine des valeurs plutôt basses parmi les ordres de grandeur des estimations méso-échelle proposée par la bibliographie [Lasserre et al, 2005: références citées dans l'article), autrement dit cette tempête fait figure d'événement

"ordinaire" parmi tous ceux qui surviennent au printemps. Notons que le flux maximum est calculé environ une douzaine d'heures avant que la simulation ne transporte le front de poussière jusqu'à Yulin situé (très approximativement) à 600 km à vol d'oiseau de cette zone source.

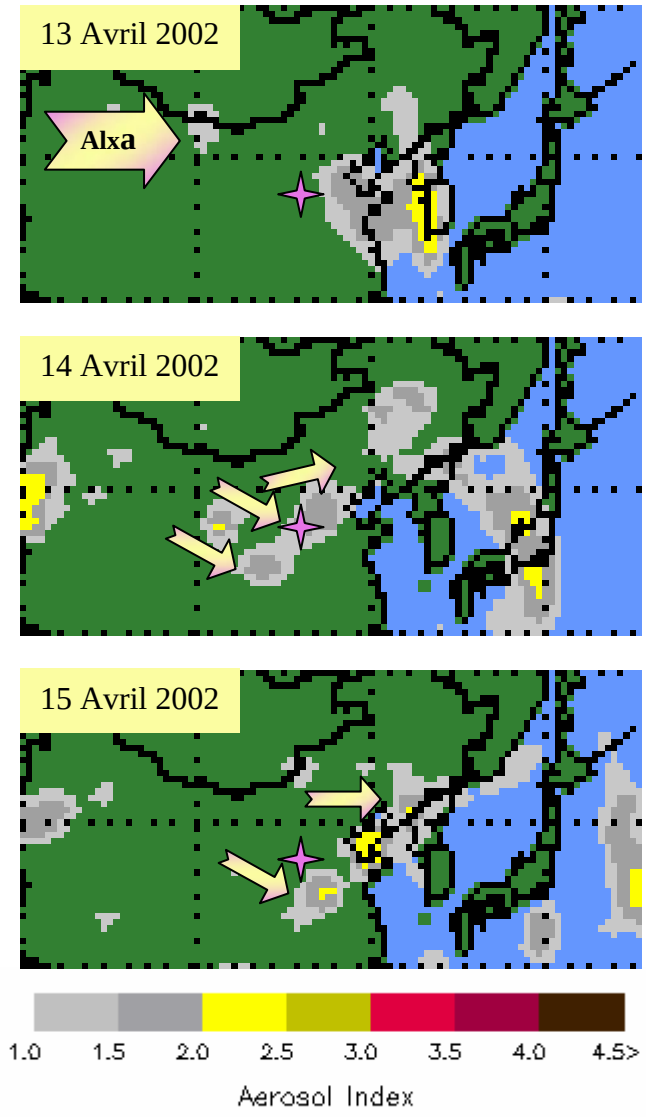


Figure 3.1 – Extraits d'images de l'indice d'aérosol TOMS (zones grises à jaune), pour les 13, 14 et 15 Avril 2002. Les flèches signalent : le 13, la source de l'épisode de tempête de sable sur l'Alxa (ou Alashan) ; le 14 et le 15, le transport des panaches résultants. L'étoile indique la position de la ville de Yulin.

4. Déduire des calculs des flux d'émission une estimation de la quantité d'aérosol minéral mis en suspension pendant l'événement étudié: le flux moyen d'émission sur une zone de 100×100 km^2 centrée sur le point source le plus émissif est de 0.9 mg.m^{-2}.s^{-1}, ce qui donne, pour les 6 heures estimées d'émissions les plus intenses, une quantité de 0.19 Mt de

poussières mises en suspension, tandis que sur les 6 journées simulées la zone entière produirait 4.1 Mt d'aérosol en suspension dans l'air.

5. Cartographier les isocontours de concentration au niveau du sol afin d'avoir une vue dans ce plan horizontal du panache d'aérosol minéral et comparer qualitativement ceux-ci aux images d'indice d'aérosol TOMS ainsi qu'à l'analyse que nous faisons de l'évolution des visibilités: la correspondance entre ces trois cartes s'est avérée tout à fait pertinente. La *figure 3.1* montrent la carte des images TOMS non présentée dans la publication (contraintes éditoriales obligent). Cette carte conforte l'analyse faite des sorties RAMS comme quoi deux panaches se sont succédés à une demi-journée d'intervalle. Un premier transport s'est dirigé plein Est, tandis que celui observé à Yulin a suivi une orientation Sud-Est à partir de la même source de l'Alxa.

6. Déterminer un profil des concentrations en fonction de l'altitude à la verticale de Yulin: celui-ci accrédite l'estimation de Alfaro et al. [2003] comme quoi la plus forte densité volumique de poussières s'étageait entre 1200 et 2200 m d'altitude. Nous estimons en outre, par ce moyen, que le transport du premier front de poussières a certainement eu lieu dans les premiers 500 m d'altitude. Par manque de données Lidar ces conclusions restent cependant spéculatives.

7. Comparer enfin nos résultats de distribution granulométrique avec les enregistrements de terrain. Les analyses granulométriques in situ ont été réalisées avec un appareil MET-ONE comportant 6 classes de taille [Alfaro et al. 2003]. Afin de comparer nos résultats aux mesures de distribution en taille, nous avons interpolé notre distribution sur 20 classes sur les 6 classes expérimentales. La correspondance est réaliste, et l'ordre de grandeur, décade par décade, est respecté. Les diamètres les plus larges sont sous-estimés par la simulation RAMS mais sont également moins représentatifs des aérosols transportés sur des longues distances.

3.1.3 – Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE DIRECT®
Atmospheric Environment 39 (2005) 3831–3841
ATMOSPHERIC ENVIRONMENT
www.elsevier.com/locate/atmosenv

Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China

F. Lasserre[a], G. Cautenet[a,*], S.C. Alfaro[b], L. Gomes[c], J.L. Rajot[d], S. Lafon[b], A. Gaudichet[b], B. Chatenet[b], M. Maille[b], H. Cachier[e], P. Chazette[e], X.Y. Zhang[f]

[a]*LAMP, Université Blaise Pascal, Complexe Scientifique des Cézeaux, BP 45, 63170 Aubière, France*
[b]*LISA, UMR-CNRS 7583, Université PVII/PXII, 61, Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil, France*
[c]*Meteo-France, CNRM/GMEI, 42, Avenue Coriolis, 31057 Toulouse, France*
[d]*IRD/LISA, UMR-CNRS 7583, Université PVII/PXII, 61, Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil, France*
[e]*LSCE, CEA-CNRS 1572, L'orme des merisiers 709, 91191 Gif/Yvette Cedex, France*
[f]*State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, CAS, 10 Fenghui S. Rd, P.O. Box 17, Xi'An 710075, China*

Received 15 October 2004; received in revised form 12 February 2005; accepted 25 February 2005

Abstract

The quantitatively most important sources of desert dust are mainly located in North Africa (Sahara and Sahel), in the Middle East (Saudi Arabia, Iran, Iraq) and in continental Asia. This paper presents the buildup of a desert dust source database valid for dust models over China and Mongolia. Our method is based upon the use of a mesoscale model—the RAMS model (Colorado State University, USA)—coupled with a DPM (Dust Production Model) already developed (LISA laboratory, France) and qualified for African and Middle-East areas. As the DPM needs surface data not completely available in this area, our approach is based on an iterative method: successive model runs are compared with observations, and the surface mapping of DPM properties is modified so as to get acceptable model results. After this step, a simple but efficient surface inventory of emissive properties of dust by soils is built. To validate it, we simulate a dust storm in April 2002, which was observed and measured in particular by a surface station near Yulin city (600 km East of Beijing). In this event, we compare the model issues with measured concentrations and particle size distribution. Our model successive fittings allow us to retrieve the mass concentration and size distribution (at least for radii $r<1\,\mu m$) in good agreement with observations. Moreover, this latter simulation agrees with the importance of the "northern high dust sources" often mentioned in literature, i.e. confirms the importance of the Alxa plateau as a main regional source. During the second event, an amount of about 4.1 Mt of dust is raised in a 6-day period, with a peak of 0.2 Mt in 6 h over only 10 000 km^2. To sum up, our results allow us to outline an easy built mineral dust source database—not needing too sharp pedological "on field" data—including erodibility fraction, soil types, land cover and snow cover, contributing to the development of the "Asian dust databank".
© 2005 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Keywords: Aerosol; Mesoscale modelling; Dust production model; Transport and mass concentration; Size number distribution

*Corresponding author. LaMP, 24 Avenue des Landais, 63177 Aubière Cédex, France. Tel.: +33 4 73 40 73 65; fax: +33 4 73 40 51 36.
E-mail address: G.Cautenet@opgc.univ-bpclermont.fr (G. Cautenet).

1352-2310/$ - see front matter © 2005 Elsevier Ltd. All rights reserved.
doi:10.1016/j.atmosenv.2005.02.056

1. Introduction

It has been established for several decades that aerosols play a major role in the evolution of the climate. Their "direct forcing" consist in partial extinction of the solar radiation in the atmosphere. In China, according to model tests by Qian et al. (2003), the radiative forcing ranges between -1 and $-14\,W\,m^{-2}$ in autumn and summer, and -1 and $-9\,W\,m^{-2}$ in spring and winter. Generally speaking, the "indirect effects" refer to their role in cloud making and the subsequent atmospheric albedo increase and thermal infrared interactions. All these effects need to be quantified either from analysis of satellite images, spectrophotometers or lidars absorption optical thickness (AOT), in-situ measurements of concentrations and surface deposition (see for Asia Chameides et al., 2002), or with numerical studies and numerous other experiments (Twomey, 1991; Ackerman et al., 2000a, b; Ramanathan et al., 2001; Chung and Seinfeld, 2002). However, these studies can only be developed in relation to the knowledge of the aerosol production itself. Therefore, a preliminary condition is that we are able to assess the intensity of the emissions. We focus here on mineral aerosols emitted by desert areas in Asia where major dust sources are widespread in arid and semi-arid regions. More specifically, dust storms over China generally originate from the northern high-dust deserts (South and West part of Mongolia's border, including Gobi deserts located from 100–110°E and 39–45°N), deserts in and out of the Huang He (Yellow river) north's curve, in particular Alxa Plateau with Badai Jaran, Ulan Buh, Tengger deserts (location of severe dust storms), and the western deserts including Taklamakan desert.

We choose Beijing (116°5E, 40°0N) and Yulin (109°4E, 38°1N) as local constraint points for our simulations. It is noted that Yulin, in the loop of the Huang He, is located exactly at cross roads of the air transported particles (Sun et al., 2001) and, along with Beijing, seems to be relevant as in situ measurement place to check the results of our simulations.

Statistical analysis show that April is the best time to observe dust storms in China (Sun et al., 2001; Xuan and Sokolik, 2002), that is why our study focuses on this representative period.

We benefit from the Dust Production Model (DPM) developed by the LISA laboratory (University of Paris, France). This model is thoroughly described in several papers (Marticorena and Bergametti, 1995; Marticorena et al., 1997; Alfaro and Gomes, 2001). It has been qualified for African and Middle-East areas. However, this DPM needs surface data not completely available for Asian area. Because each geographical area has its own pedological specificities, this article proposes to build a simple but efficient cartography of mineral aerosol emitting zones in China and Mongolia. Then it details the results of mesoscale atmospheric model (RAMS) simulations using this map and shows that they match with on-field observations.

2. A short description of the RAMS and DPM

Our core model is the mesoscale RAMS model developed by the Colorado State University (Cotton et al., 2003) in its 4.3 paralleled version. It is a eulerian, nonhydrostatic meteorological model featuring powerful facilities such as four-dimensional data assimilation (4DDA), interactive 2-way nesting (up to 8 grids), bulk or detailed microphysics (7 hydrometeors) and a comprehensive surface model. In our laboratory, we currently use this for many purposes, including air chemistry, natural or anthropogenic pollution, in various conditions: urban pollution in Europe, equatorial/tropical areas chemistry from biomass burning and anthropogenic activities in Africa and in Indian Ocean, desert dust cycle, radiative impact of aerosols and aerosol/clouds interaction and microclimate of agricultural sites. For these tasks, we have coupled online the mesoscale model with specialized modules: gas or liquid phase chemistry, radiative models accounting for particulates aerosols optical properties, source and sink modules for emissions and particular inventories for each emitted species.

As regards desert dust, the aerosol flux is provided by DPM developed by Marticorena and Bergametti (1995), Marticorena et al. (1997) and by Alfaro et al. (1998) and Alfaro and Gomes (2001). Recall briefly the principle of the scheme: a horizontal "saltation" flux of coarse soil aggregates is driven by wind. Aerosol (fine particles) is formed by "sandblasting" when aggregates collide with ground and explode. The DPM needs the knowledge of the wind speed at a reference level (10 m), and of a limited set of surface properties, among which two key parameters are (i) the aggregates size distribution and (ii) the surface roughness. We also need the erodibility percentage, here defined as the ratio of soil surface available for dust emission (details in Section 3.1), and this controls the capability of a given surface to emit dust for a given meteorological situation.

The authors of the DPM have published the mapping of the surface properties over many arid zones (in development for semi-arid zones). The DPM has been coupled online to the RAMS model (*online* means that the wind speed is provided by the model itself). At each time step and grid point, the DPM calculates the amount of mobilized dust, which is redistributed in the first model levels, diffused by turbulence, advected in three dimensions and deposited by gravity (or any scavenging mechanism). We use a spectral representation, i.e. the dust mass flux is redistributed over 20 size

classes (20 discrete bins) with extreme values ranging from 0.1 to 13 μm. The spectrum has three lognormal mass components with radii: 0.75, 3.35 and 7.1 μm, and logarithmic standard deviations 1.7, 1.6 and 1.5. The respective weights of each mode in the initial spectrum, i.e. during the dust rise and before any deposition, are governed by the available kinetic energy of the saltating aggregates (Alfaro et al., 1998; Alfaro and Gomes, 2001). The mineral aerosol density is assumed to be 2650 kg m^{-3} (Marticorena and Bergametti, 1995). For all these processes except removal, we have used the built-in "inert tracer" facility of RAMS: this scheme provides advection, diffusion and time evolution of any passive scalar. The coupling of the DPM with RAMS is described in Cautenet et al. (2000), Pradelle and Cautenet, (2002) and Minvielle et al. (2004).

Now we run the RAMS model coupled with the DPM in order to select, by a series of trials and comparisons with experimental data, the best set of surface properties. Such a tuning procedure is assumed to provide a suitable dust source database. Note that we take the soil wetness into account to some extent, as we assume the dust emission flux is zero when snow is reported at a given location or in case of recent rain.

3. Ground source data specification: tuning process

3.1. Main lines of the DPM

First of all, we must recall briefly how the DPM works. In this scheme, (Marticorena et al., 1997; Alfaro and Gomes, 2001), the dust flux at a given grid point is the consequence of all the contributions of the various soil textures which make up the surface. Each grid point includes from 1 to 5 different soil types according to their mineralogy. At a given grid point (x,y), and for soil type number J, the saltation flux $G_J(x,y)$, i.e. the horizontal flux of aggregates, is calculated using a set of physical parameters, the most important being the roughness length and the erodibility. About this latter factor: let $G_{T,J}(x,y)$ be the saltation flux emitted by the *J-type* if its surface was likely to emit dust over its whole area. The erodibility $\eta_J(x,y)$ is a factor (lying between 0 and 1) which takes the local emissive potential into account for each of the 5 soil types so that the actual dust flux is $G_J = \eta_J(x,y)G_{T,J}(x,y)$. It must be stated that a given type of soil may have η changing from one point to the other (Marticorena and Bergametti, 1995; Marticorena et al., 1997). The total saltation flux $G(x,y)$ is the sum of all the contributions G_J. Now the vertical dust flux F, i.e. the dust mass emitted per unit surface and time, is calculated via a conversion factor F/G which takes into account the physico-chemical characteristics of the soil (e.g. the binding energy of aggregates, or the surface clay content). It follows that dust flux F strongly depends on the erodibility percentage.

This DPM leads to a realistic size distribution of the emitted particles according to the surface wind speed (Alfaro and Gomes, 2001).

The procedure we present here is based upon tuning erodibility, as this is recognized as a prominent factor for dust emission, particularly in East Asia (Zender et al., 2003).

3.2. Dust source map elaboration starting from available data: First guess step

We now present the construction method of a database suitable for the dust flux calculations and derived from a limited available set of surface properties. A first map is built and in this we give every grid point an information, converted in erodibility percentage, about the soil roughness that can be derived (at least on a semi-quantitative basis) from "Polder" satellite data (first Polder mission, 1996–1997, *Chazette* pers. comm.) covering China and Mongolia, inclusive of all the emissive deserts of the region. In the DPM physics, the greater the roughness , the lower the wind energy available for dust production. If we define an erodibility ranging between 0% and 100%, a null percentage means none mobilized dust part and 100% a complete erodible soil whatever its texture is (even if this last value is readily seen as quite unrealistic).

The larger part of this first source map is made of "sand and loam" ground—representing more than 95% of the emissive zones (Xuan and Sokolik, 2002, Table 2)—referring to the Chinese soil texture classification of Hseung (1984).

3.3. Dust source map: The tuning process

The construction of the DPM map is based upon a set of iterative runs which allow refining surface data (erodibility and soil type) in order to force the model results towards the observed characteristics of a documented event: a large sand storm which occurred in China and Mongolia in mid-April 1998. To some extent, this procedure looks like an inversion exercise.

The East Asia data on April 1998 sandstorms are related by Murayama et al. (2001), Husar et al. (2001), Sun et al. (2000) and Uno et al. (2001). The latter authors more particularly simulated the sandstorms that occurred on the 14–15 and on the 18–20 April 1998. They observed or calculated a maximum in mass concentration of about 900μg m^{-3} in Beijing, China (Sun et al., 2000). Moreover, some field data in particles concentrations are available in Korea (In and Park, 2002).

From a satellite-derived roughness map displayed in Fig. 1(a), we performed simulations to calibrate the

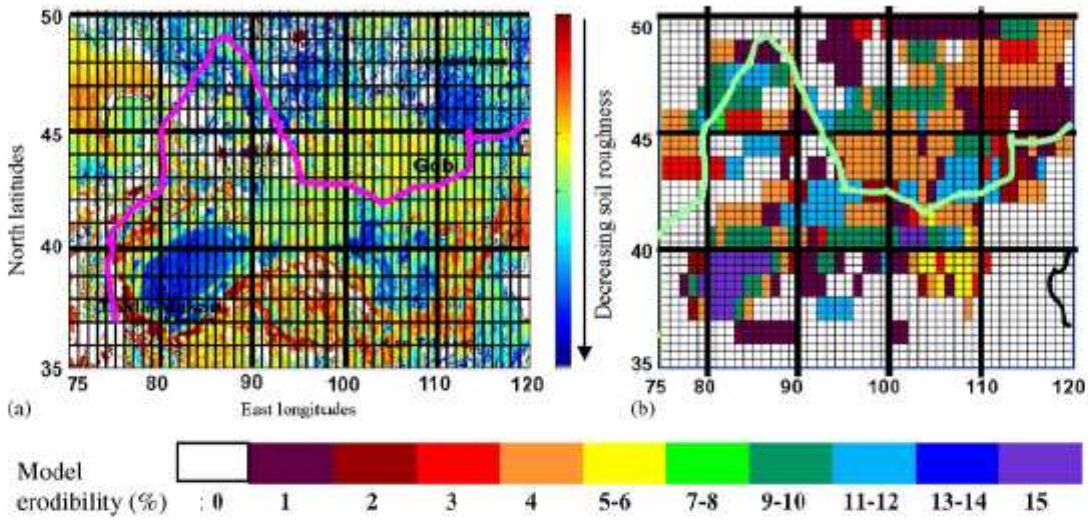


Fig. 1. (a) POLDER soil roughness image and (b) Model-derived erodibility of the grounds (percentage).

erodibility against the events mentioned above. We first ran simulations with a homogeneous soil texture (arid desert of sand and loam type) on all the area to obtain the magnitude of mass transportations. The resulting erodibility ranged between 0% and 25% by grid point.

We then completed the first guess map with additional information derived from soil surface properties in China and Mongolia. We used charts provided on-line by IIASA-LUC GI Database [http://www.iiasa.ac.at/Research/LUC/GIS/soil_types.htm], along with atlases provided by the Food and Agricultural Organization (FAO) [see e.g. http://www.fao.org/ag/agl/swlwpnr/reports/y_ea/z_cn/en/e_soils.htm]. These data give information on vegetation cover, farming zones, mineral texture of the grounds, aeolian and water erosion maps. By lack of more extensive soil data (which is precisely what is challenging with this method), we here allocate to each square degree only one type of ground instead of the five types used in the "standard method" (Marticorena et al., 1997).

This empirical iterative procedure manages at the same time the erodibility fractions and the soil-type properties in order to obtain acceptable results compared to (i) on-field observations and (ii) other published simulation issues. Erodibility and soil textures properties are used at the same time by the RAMS model, but for clarity purposes, their specifications are displayed on two different charts: Fig. 1(b) displays the final erodibility map after the end of the tuning process and Fig. 2 exposes the final map of soil blend. Fig. 2 soil map considers 13 types of ground textures among the 20 proposed in the typology of Marticorena et al. (1997). With this method, a given soil blend could have different erodibilities depending on the geographical place.

On the tuned maps, the more potentially erodible zones—Taklamakan desert, Gobi, arid Alxa plateau, West of the loop of the Huang He—are allotted a maximum erodibility of 15%, while some areas—plain zones primarily exploited by irrigated agriculture, as well as high heights—have a null erodibility. This is in accordance with Zhang et al (1998) earlier findings, who points Taklamakan and Badai Jaran as efficient dust sources.

This approach would be incomplete if it did not take into account the snow conditions specific to certain elevated areas (in particular in Western Mongolia, Western margin of the Gobi Desert) at the simulated periods. Indeed, snow precludes any dust rise when present. We superposed on our results the satellite observations [http://www.ssd.noaa.gov/PS/SNOW/] giving the snow-covered areas at these periods to get a source chart specific to each studied period. Fig. 2 includes the snow-cover parameter of mid-April 2002. As suggested by Gong et al. (2003), the source map should take into account the deserts of the North-East of China. These deserts can be very little snow-covered, like during the episodes simulated in spring 2001 by Gong et al. (2003). In this work, the South-West part of these deserts was taken into account but there was an important snow-cover in this area in April 2002, implying its lesser contribution for the studied period.

We thus ascertain two dust source parameters—erodibility coefficient and soil type—which will be used as inputs of the on-line DPM model to calculate the dust fluxes emission. This method gives a reference baseline for various further simulations as far as they concern the last decades when these soil features did not vary significantly.

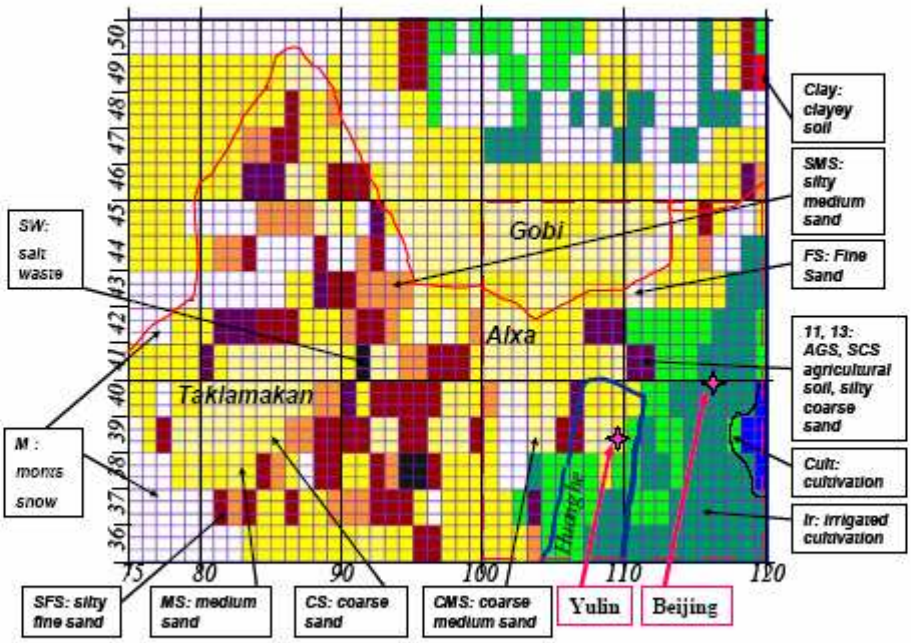


Fig. 2. Model-derived soils properties covering China and Mongolia valid for April 2002 , 1° resolution (difference between longitudes (45) and latitudes (15) numbers is offset by a factor 1/3: each square degree is thus represented by a vertical column of 3 pixels). Names are those of Marticorena and Bergametti (1995) typology, here illustrated in some places. Large dashed line locates the simulated area with a resolution of $25 \times 25\,km^2$.

4. Results of model simulations

We present a validation test of our soil mapping from field observations gathered during the 2002 ACE-Asia campaign, especially an intensive campaign performed in April by Alfaro et al. (2003). They investigated back trajectories, recorded number and mass concentrations, size distribution, elemental composition and radiative properties of several particle samples collected during storm episodes.

4.1. The simulated domain

This map is displayed in Fig. 2. We simulated the period from 10 to 18 April 2002 on a geographical area ranging between 100°E and 120°E and from 35°N to 45°N (i.e. approximately 1600 km × 900 km in Cartesian projection) with an horizontal model resolution of $25 \times 25\,km^2$.

Snow was abundant in April 2002 in the NE potentially emitting zones. It was also present on Tibetan plateau. So, as explained above, if snow is present at a given point, the dust flux is prescribed to be zero. The Southern zone of Gobi named Alxa is rarely snow covered in April and constitutes the core area of our study.

4.2. Dust observations

The mineralogical analysis (Alfaro et al., 2003) carried out during the dust storm which occurred on 14 April at Yulin clearly indicates that the Alxa Plateau was the source of the dust plume.

Moreover, this result is corroborated by the TOMS Aerosol Index images [not detailed here, see http://toms.gsfc.nasa.gov/aerosols/aerosols.html] of 12, 13 and 14 April, which show a dust rise in the South of Gobi, between 80°E and 90°E, and its transport towards South-East, i.e. towards Yulin. TOMS images show that dust plume occurred in Taklamakan area on the same period did not participate significantly with the Yulin event (it has been confirmed by the model with large-scale simulation on the whole China-Mongolia area, not shown here).

The Alxa Plateau main role is also suggested by visibility studies derived from the local weather stations data. We deal with synoptic visibility supplied by 137 weather stations participating in the ECMWF dataset on our geographical zone of interest. The visibility is normalized to 1 for the maximum (depending on the station and the country, the observed maximum distance visibility varies from 30 to 60 km). Prior to all, we have checked that the low visibilities are not associated to hydrometeors (rain, mist). Fig. 3 draws the visibility

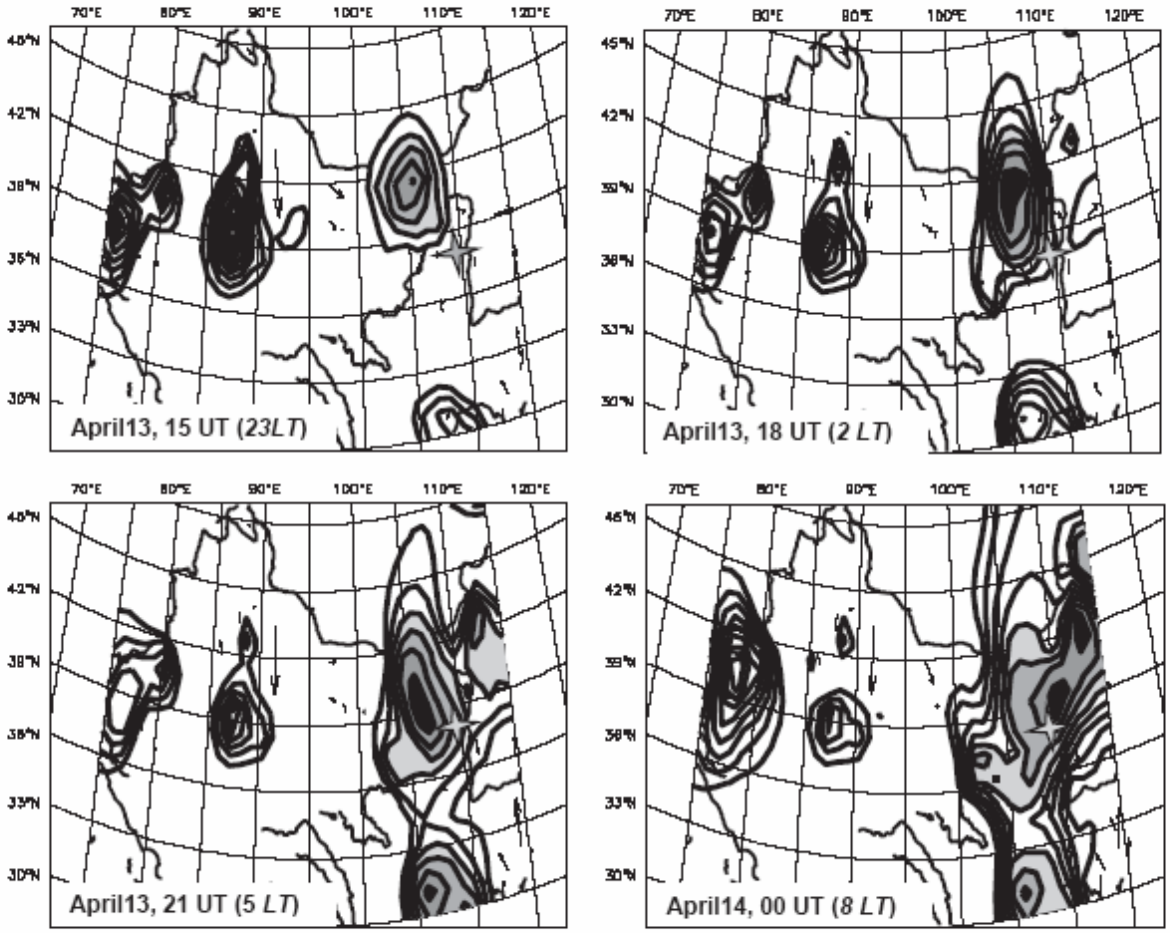


Fig. 3. Isocontours of normalized visibilities (arbitrary units). Grayed zone correspond to the area of interest. The gray darkening indicates decay in visibility. Wind speed arrows (arbitrary units) indicate in different places the leading wind flow; Star: Yulin.

pattern interpolated between the different weather stations over China and Mongolia. We show the visibility in isolines (arbitrary units) over the area corresponding to the studied event. As far as we can rely on the measured visibilities, this chart clearly indicates that the origin of the dust plume lies in the Alxa plateau.

4.3. Modelled mass concentrations

Fig. 4a compares the modelled mass concentrations with the in-situ measurements performed by Alfaro et al. (2003). These measurements were done with a tapered element oscillating microbalance (TEOM) and relates to the particles lower than 9 μm (PM9) in diameter. When comparing these local observations with model results, we must keep in mind that our model horizontal resolution is 25 km. However it is noted that the temporal evolutions are satisfactorily similar, chronologically and quantitatively as well. The observed peak at 07:15 AM LT on 14 April (about 23:00 UT on 13 April) is 4650 $\mu g\,m^{-3}$ (Alfaro et al., 2003); the modelled peak reaches 3750 $\mu g\,m^{-3}$ with a slight anticipation (the model peak is about 5 h in advance vs. observation). For comparison, Zhang et al. (2003) recall that, in April, during weakly dusty days, the TSP background is only 150 $\mu g\,m^{-3}$ at Yulin experimental site. Finally, we note in this figure some brief peaks not retrieved by model (for instance during the afternoon of 15 April). This could originate from local sources, as suggested by observers in situ and by Zhang et al. (2003). As the local dust source may be much reduced in area, when compared with our horizontal mesh of $25 \times 25\,km^2$, our model is not able to account for this subgrid scale event.

If we look at the modelled vertical profiles displayed in Fig. 4(b) during the peak of 13 April , one observes the suddenness of the arrival of dust and one can also note that dust mainly lies between 0 and 2000 m, which is compliant with the "height of scale" of 1700 ± 500 m proposed by Alfaro et al. (2003). Unfortunately, we

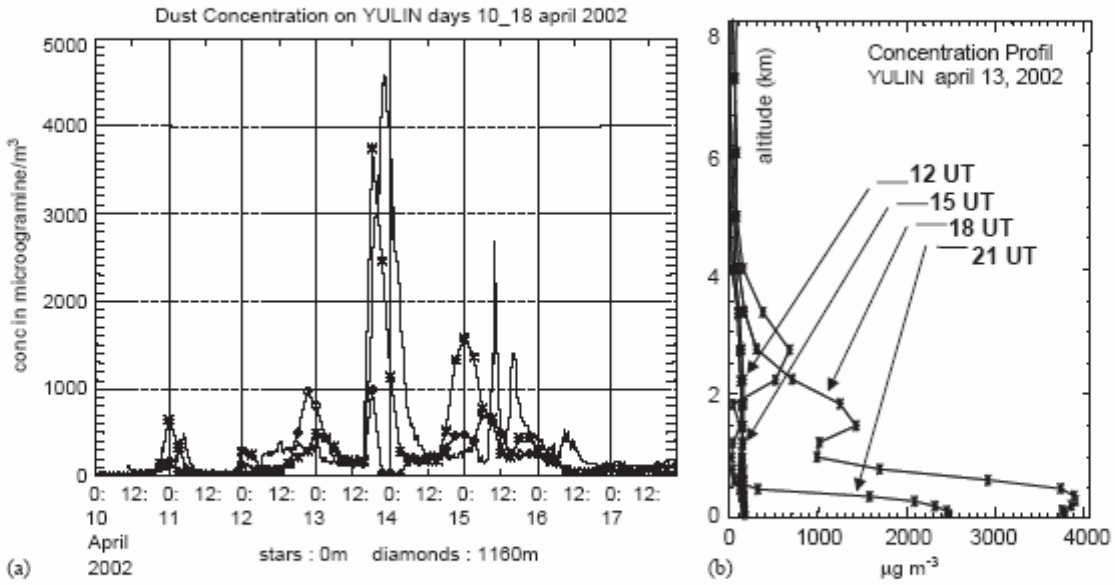


Fig. 4. (a) Dust concentrations ($\mu g\,m^{-3}$) in Yulin area (UT+8 represent approximately LT at Yulin), from 10 to 18 April 2002. Stars: modelled concentration near ground level; diamonds: modelled concentration at 1200 m.; Solid line: insitu MET ONE data (Alfaro et al., 2003). (b) Vertical profiles of concentrations ($\mu g\,m^{-3}$) inYulin area, 13 April, 23:00 UT, during dust event.

cannot propose a fine analysis of the AOT compared with dust column content because the spectrophotometer did not provide data between 13 April, 10:27 UT and 14 April, 05:56 UT, i.e. during the dust plume episode.

The results in isocontours of concentration in the area of Yulin, visible on Fig. 5, clearly show the initial zone of dust located at the NW of this zone, i.e. the East outlet of the Western Alxa Plateau: Ulan Buh and Tengger deserts. Focusing on the dust transport, the intense dust plume on 13 April (Fig. 5) rising in the NW corner of our model at 00:00 UT (model wind peak reaches $29\,m\,s^{-1}$) is transported eastwards. Dust patterns stretches and extends eastwards and do not reach Yulin. We can also see that the dust plume observed at Yulin on 13 April at 23:00 UT takes its origin in the same NW area at 18:00 UT on 13 April (wind peaks of about $16\,m\,s^{-1}$); dust storm is then moving towards South–East direction.

4.4. Modelled mass flux of emitted particles

The modelled fluxes on 13 and 14 April locate perfectly the most intense source in NW of the model zone. Principal dust flux going up from Alxa plateau lasts broadly 6 h on 13 April and finds its apogee between 06:00 UT and 12:00 UT (between 14:00 and 20:00 local). This is 12 h before this cloud does cover Yulin. Fig. 6 map exposes the dust flux peak around 09:00 UT.

During the 8 studied days, the total modelled amount of dust uptake is 4.1 Mt, which seems within the range of the scarce figures available in the literature. Xuan (1999) estimated an average of 25 Mt for the production of the whole of the Chinese territory, (roughly) north of the parallel 36°N during spring. Our estimate indeed looks much greater. Shao et al. (2002) give a total dust emission amount of about 27.6 Mt for 6 days of April 2000 over all the North-East China regions. We note that in our simulation at 25 km, the mass flux reaches a maximum of $2.1\,mg\,m^{-2}s^{-1}$ on 13 April (about 09:00 UT) in the Southern part of the Mongolia/China border, which is the same order of magnitude as the flux simulated by Liu et al. (2003) during the April 2001 storms. We also agree with simulations of the 2002 events by Shao et al. (2003) which obtain a dust emission rate in Gobi desert of about $5\,mg\,m^{-2}s^{-1}$. During spring 2000, Shao et al. (2002) find a maximum dust flux (over all North China) ranging between 1 and $3\,mg\,m^{-2}s^{-1}$. For 19 April 1998 intense dust storm episode, Nickovic et al. (2001) calculates dust fluxes exceeding $10\,mg\,m^{-2}s^{-1}$. To illustrate our own figures, we have estimated the mass flux over a sector of $10\,000\,km^2$ (approximately $1^\circ \times 1^\circ$) centered on the most emissive grid point ($2.1\,mg\,m^{-2}s^{-1}$). In this area, the mass flux average is $0.9\,mg\,m^{-2}s^{-1}$ from 06:00 UT to 12:00 UT. Thus, we get a total amount of 0.19 Mt of dust in only 6 h.

4.5. Spectral features

We compare in this part the spectra of the particles as recorded by an optical size analyzer MET ONE 237B

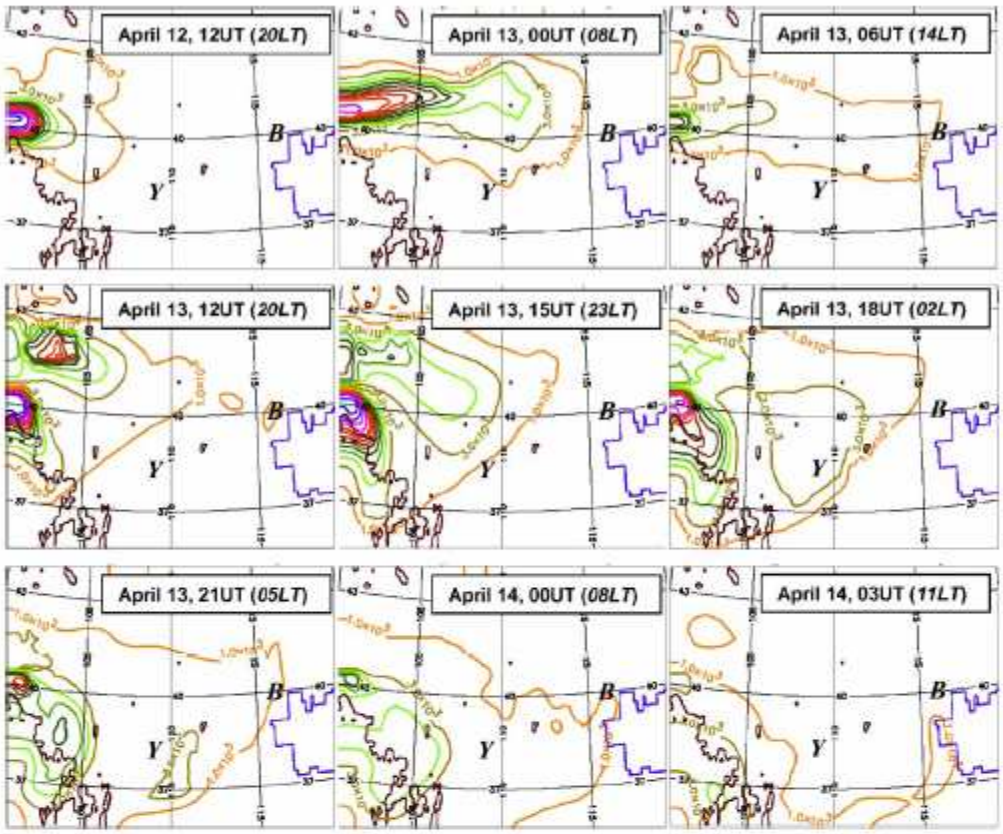


Fig. 5. Isocontours of mineral aerosols concentrations ($\mu g\,m^{-3}$) at ground level: 13 and 14 April 2002. Simulation with $25 \times 25\,km^2$ horizontal resolution. Y: Yulin, B: Beijing. Isocontour values ($10^3\,\mu g\,m^{-3}$): 1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 20, 25, 30, 40.

(Alfaro and Gomes: pers. comm.) with simulations. The apparatus MET ONE distinguishes 6 size intervals (according to their diameter): 0.3–0.5 μm; 0.5–0.7 μm; 0.7–1.0 μm; 1.0–2.0 μm; 2.0–5.0 μm; > 5.0 μm. Our simulations distribute the dust over 20 classes of average radii ranging between 0.1 μm to 13 μm. We have recalculated our distribution according to the MET ONE set of experimental classes. This eliminates 4 simulated classes of size lower than 0,3 μm because they are not recorded by MET ONE. Figs. 7a and b display examples of comparison, before and during the storm (culminating the 14 towards 00 UT). We note a rather good agreement between observed and modelled values in the sub-micronic range: the orders of magnitude of number concentration vary between 10^7 and $10^9\,m^{-3}$. The differences do not exceed a factor of 10 for the larger sizes, because (i) our model anticipates the true dust rise by a few hours, which explains that the larger modes are overestimated by the model at the beginning of the storm (0000 UTC) and (ii) during the storm itself, we note an underestimation by the model of the large particles content, induced possibly by a local (near the station) dust rise, not accounted for in the model, but suggested by local observers. This coarse range of particle sizes has to be developed because of their mass (In and Park, 2003) and number (Watanabe and Honoki, 2003) impacts on Korea and Japan sites. On Fig. 7c, observations show two local maximum concentrations for the 0.3 and 3.0 radii-micrometers particles, where the simulation spectrum rather indicates two maximum concentrations for 0.5 and 1.6 μm. Overall, the agreement remains reasonable on a few-days period of time.

5. Conclusions

In this paper, we propose a surface database suitable for use in a Dust Production Model (DPM) over China and Mongolia areas. We used the DPM designed by the French LISA laboratory (Paris). To make up the surface chart, we start from soils erodibility data (adapted from POLDER observations) coupled with information about the soil nature provided by IIASA-LUC and FAO databases. The snow cover is also accounted for. The DPM has been included (online coupling) in the mesoscale RAMS model. A set of trials and corrections is

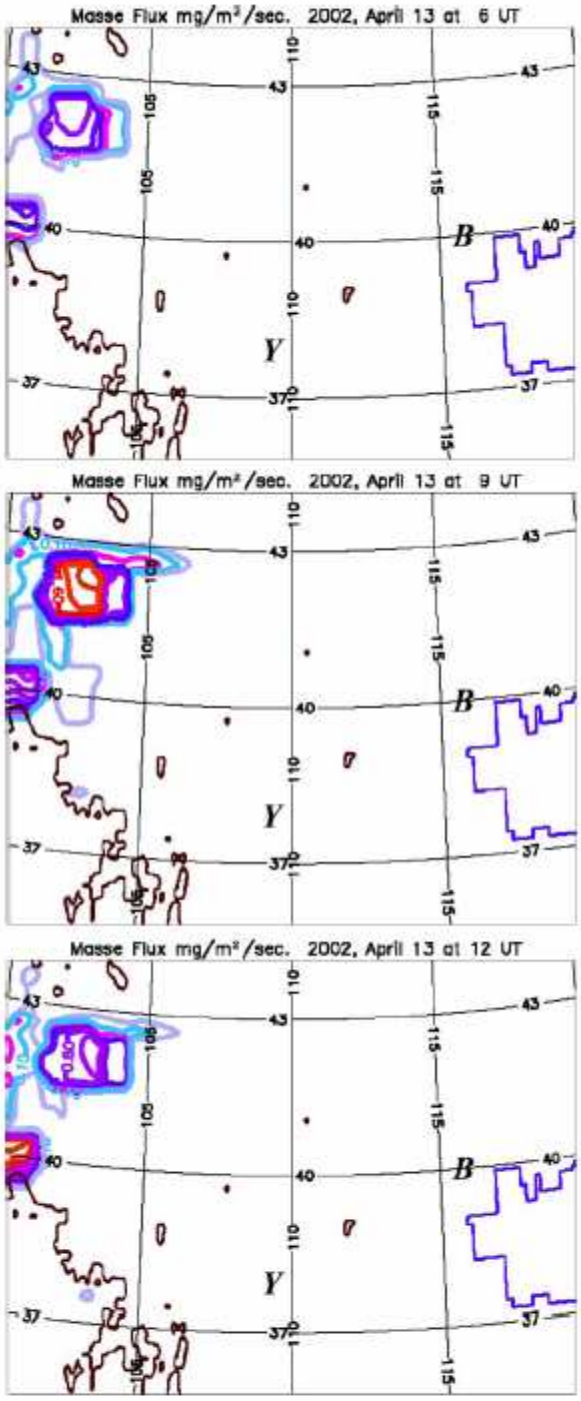


Fig. 6. Mass mineral aerosol flux simulated at 06, 09 and 12 UT (add 8 h for LT) 13 April 2002. Isocontour values (mg m^{-2} s^{-1}): 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8, 2.0. Thin isolines are 2000 m altitude line and Yellow sea coastline. Y: Yulin, B: Beijing.

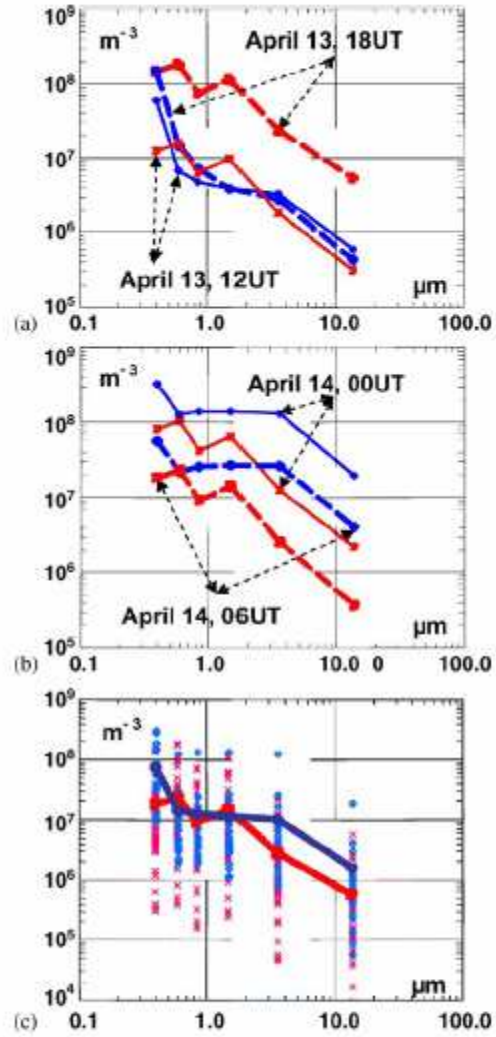


Fig. 7. Number spectra (m^{-3}) of dust particles depositions at Yulin, function of their diameter (μm). Red stars: model simulation; Blue diamonds: insitu measurements (MET-ONE). (a) 13 April 2002, (b) 14 April 2002, (c) global comparison between observed and modelled spectra at Yulin during the 11–16 April period.

brought on the soil map using data available in the literature. At the end of this first process, a surface map is available as constant input for the DPM (the only parameter likely to change is the snow cover). The mesoscale model coupled with the DPM is then tested. The model issues are compared to mineral dust samples collected during April 2002 at Yulin station (600 km East of Beijing) during the ACE-Asia field phase experiment. The soil map developed in the step above is used, including snow cover. In particular, we focus on a dust plume observed on the morning of 14 April at Yulin.

This comparison exercise turns to be rather satisfactory. Our simulation anticipates by about 5 h the

concentration peak but gives its magnitude with a good agreement. Dust emission fluxes, vertical profiles and horizontal ground concentration time-series, size spectra and total dust loads issued from the simulation are also representative of the observed event. We therefore may conclude that the simple soil map that we have built in this paper may be satisfactorily used as input of the DPM for future works in this region.

From this model, we also confirmed that the geographical location suspected to be the major source related to this dust storm is the Alxa plateau, including the North-West loop of the Huang He River.

Finally, these results confirm the quality of the simple map of soil properties used as input of the DPM, as long as we may rely on the experimental dataset used here. It may be commented that the experimental dataset involved in the comparison task is not completely constraining, but as far as we are able to compare the model issues with corresponding observations, the model looks realistic and the procedure can be reproduced. The iterative procedure employed to ascertain the dust source is perfectly reproducible on other regions nowadays poorly documented with soil information because it only needs few mineralogical data and experimental reference records to be compared with model issues. Once the erodibilities and soil properties maps are built, the simulation procedure can run. For North Central China, the maps just need to be updated with the snow-cover mask corresponding to the simulated period or event.

Acknowledgements

Our work was supported by funding from the French Centre National de la Recherche Scientifique (Programme National de Chimie Atmosphérique). This work makes use of the RAMS model, which was developed under the support of the National Science Foundation (NSF) and the Army Research Office (ARO). Computer resources were partly provided by CINES (Centre Informatique National de l'Enseignement Supérieur). We thank Dr B. Holben for his effort in establishing and maintaining the AERONET Dalanzadbag site.

Finally, we also wish to thank the computer team of the Laboratoire de Physique de l'Atmosphère of the Université Blaise Pascal (France): F. Besserve, A.M. Lanquette and Ph.Cacault.

References

Ackerman, A.S., Toon, O.B., Stevens, D.E., Heymsfield, A.J., Ramanathan, V., Welton, E.J., 2000a. Reduction of tropical cloudiness by soot. Science 288, 1042–1047.

Ackerman, A.S., Toon, O.B., Taylor, J.P., Johnson, D.W., Hobbs, P.V., Ferek, R.J., 2000b. Effects of aerosols on cloud: evaluation of Twomey's parameterization of cloud susceptibility using measurements of ship tracks. Journal of Atmospheric Sciences 57, 2684–2695.

Alfaro, S.C., Gomes, L., 2001. Modelling mineral aerosol production by wind erosion: emission intensities and aerosol size distributions in source areas. Journal of Geophysical Research 106 (D16), 18075–18084.

Alfaro, S.C., Gaudichet, A., Gomes, L., Maille, M., 1998. Mineral aerosol production by wind erosion: aerosol particle sizes and binding energies. Geophysical Research Letters 25, 991–994.

Alfaro, S.C., Gomes, L., Rajot, J.L., Lafon, S., Gaudichet, A., Chatenet, B., Maille, M., Cautenet, G., Lasserre, F., Cachier, H., Zhang, X.Y., 2003. Chemical and optical characterization of aerosols measured in spring 2002 at the ACE-Asia supersite, Zhenbeitai, China. Journal of Geophysical Research 108 (D23), 8641.

Cautenet, G., Guillard, F., Marticorena, B., Bergametti, G., Dulac, F., Edy, J., 2000. Modelling of a Saharan dust event. Meteorogische Zeitschrift 9 (4), 221–230.

Chameides, W.L., Luo, C., Saylor, R., Streets, D., Huang, Y., Bergin, M., Giorgi, F., 2002. Correlation between model-calculated anthropogenic aerosols and satellite-derived cloud optical depths: Indication or indirect effect ? Journal of Geophysical Research 107 (D10).

Chung, S.H., Seinfeld, J.H., 2002. Global distribution and and climate forcing of carbonaceous aeosols. Journal of Geophysical Research 107 (D19).

Cotton, W.R., Pielke Sr., R.A., Walko, R.L., Liston, G.E., Tremback, C.J., Jiang, H., McAnally, R.L., Harrigton, J.Y., Nicholls, M.E., Carrio, G.G., Mcfadden, J.P., 2003. RAMS 2001:current status and future directions. Meteorology and Atmospheric Physics 82, 5–29.

Gong, S.L., Zhang, X.Y., Zhao, T.L., McKendry, I.G., Jaffe, D.A., Lu, N.M., 2003. Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 2. Model simulation and validation. Journal of Geophysical Research 108 (D9), 4262.

Hseung, Y., 1984. The Soil Atlas of China. Cartographic Publ., Beijing.

Husar, R.B., Tratt, D.M., Schichtel, B.A., Falke, S.R., Li, F., Jaffe, D., Gasso, S., Gill, T., Laulainen, N.S., Lu, F., Reheis, M.C., Chun, Y., Westphal, D., Holben, B.N., Gueymard, C., McKendry, I., Kuring, N., Feldman, G.C., McClain, C., Frouin, R.J., Merrill, J., DuBois, D., Vignola, F., Murayama, T., Nickovic, S., Wilson, W.E., Sassen, K., Sugimoto, N., Malm, W.C., 2001. Asian dust events of April 1998. Journal of Geophysical Research 106 (D16), 18,317–18,330.

In, H.-J., Park, S.-U., 2002. A simulation of long-range transport of Yellow Sand observed in April 1998 in Korea. Atmospheric Environment 36, 4173–4187.

In, H.-J., Park, S.-U., 2003. The soil particle size dependent emission parameterization for an Asian dust (Yellow Sand) observed in Korea in April 2002. Atmospheric Environment 37, 4625–4636.

Liu, M., Westphal, D.L., Wang, S., Shimizu, A., Sugimoto, N., Zhou, J., Chen, Y., 2003. A high-resolution numerical study of the Asian dust storms of April 2001. Journal of Geophysical Research 108 (D23), 8653.

Marticorena, B., Bergametti, G., 1995. Modeling the atmospheric dust cycle: 1—design of a soil-derived dust emission scheme. Journal of Geophysical Research 100, 16,415–16,430.

Marticorena, B., Bergametti, G., Aumont, B., Callot, Y., N'Doumé, C., Legrand, M., 1997. Modeling the atmospheric dust cycle: 2—simulation of Saharan dust sources. Journal of Geophysical Research 102, 4387–4404.

Minvielle, F., Cautenet, G., Lasserre, F., Foret, G., Cautenet, S., Leon, J.F., Andreae, M.O., Mayol-Bracero, O.L., Gabriel, R., Chazette, P., Roca, R., 2004. Modelling the transport of aerosols during INDOEX 1999 and comparison with experimental data. Part 2: continental aerosols and their optical depth. Atmospheric Environment 38, 1823–1837.

Murayama, T., Sugimoto, N., Unom, I., Kinoshita, K., Aoki, K., Hagiwara, N., Liu, Z., Matsui, I., Sakai, T., Shibata, T., Arao, K., Sohn, B.-J., Won, J.-G., Yoon, S.-C., Li, T., Zhou, J., Hu, H., Abo, M., Iokibe, K., Koga, R., Iwasaka, Y., 2001. Ground-based network observation over dust events of April 1998 in East Asia. Journal of Geophysical Research 106 (D16), 18,345–18,359.

Nickovic, S., Kallos, G., Papadopoulos, A., Kakaliagou, O., 2001. A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere. Journal of Geophysical Research 106 (D16), 18,113–18,129.

Pradelle, F., Cautenet, G., 2002. Radiative and microphysical interactions between marine stratocumulus clouds and Saharan dust 2 modeling. Journal of Geophysical Research 107 (D19), 4413.

Qian, Y., Leung, L.R., Ghan, S.J., Giorgi, F., 2003. Regional climate effects of aerosols over China: modelling and observation. Tellus B 55, 914–934.

Ramanathan, V., et al., 2001. Indian ocean experiment: an integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze. Journal of Geophysical Research 106 (D22), 28,371–28,398.

Shao, Y., Jung, E., Leslie, L.M., 2002. Numerical predictions of northeast Asian dust storms using an integrated wind erosion modelling system. Journal of Geophysical Research 107 (D24), 4814.

Shao, Y., et al., 2003. Northeast Asian dust storms: real-time numerical prediction and validation. Journal of Geophysical Research 108 (D22), 4691.

Sun, J.M., Liu, T.S., Lei, Z.F., 2000. Sources of heavy dust fall in Beijing, China on April 16, 1998. Geophysical. Research. Letters. 27, 2105–2108.

Sun, J.M., Zhang, M., Liu, T.S., 2001. Spatial and temporal characteristics of dust storms in China and its surrounding regions, 1960–1999: relations to source area and climate. Journal of Geophysical Research 106 (D10), 10,325–10,333.

Twomey, S.A., 1991. Aerosols, clouds and radiation. Atmospheric Environment 25, 2435–2442.

Uno, I., Amano, H., Emori, S., Kinoshita, K., Matsui, I., Sugimoto, N., 2001. Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: a numerical simulation. Journal of Geophysical Research 106 (D16), 18,331–18,344.

Watanabe, K., Honoki, H., 2003. On the Kosa (Asian dust) event in November 2002: aerosol number concentration and precipitation chemistry in Toyama, Japan. Journal of Meteorological Society of Japan 81 (6), 1489–1495.

Xuan, J., 1999. Dust emission factors for environment of Northern China. Atmospheric Environment 33, 1767–1776.

Xuan, J., Sokolik, I.N., 2002. Characterization of sources and emission rates of mineral dust in Northern China. Atmospheric Environment 36, 4863–4876.

Zender, C.S., Newman, D., Torres, O., 2003. Spatial heterogeneity in aeolian erodibility: uniform, topographic, geomorphic, and hydrologic hypotheses. Journal of Geophysical Research 108 (D17), 4543.

Zhang, X.Y., Arimoto, R., Zhu, G.H., Chen, T., Zhang, G.Y., 1998. Concentration, size distribution and deposition of mineral aerosol over Chinese desert regions. Tellus B 50, 317–330.

Zhang, X.Y., Gong, S.L., Shen, Z.X., Mei, F.M., Xi, X.X., Liu, L.C., Zhou, Z.J., Wang, D., Wang, Y.Q., Cheng, Y., 2003. Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 1. Network observations. Journal of Geophysical Research 108 (D9), 4261.

3.2 Simulation du transport d'aérosol minéral pour un évènement de tempête survenu en Avril/Mai 2005

3.2.1 – Contexte et ressources en données de validation pour l'étude de l'événement du printemps 2005.

Dans le but d'étudier les impacts concomitants de la pollution en aérosol minéral et en aérosol anthropique (chapitre 4) sur les agglomérations du continent Est Asiatique, nous cherchons à simuler un épisode de pollution où un transport de particules désertiques se mélangerait avec un transport de polluants d'origine anthropique et qui soit suffisamment documenté pour pouvoir confronter nos résultats à des mesures in situ.

Nous ne cherchons pas à rendre compte d'un transport de poussière qui correspondrait manifestement à une tempête « sévère » (ou *super duststorm*) comme les tempêtes d'intensités exceptionnelles du type de celles du 19 Avril 1998 ou du 20 mars 2002. Pourquoi ce choix ? Parce que si en terme de masses de poussières transportées celles-ci sont d'un intérêt évident, il n'en demeure pas moins qu'en fréquence elles ne représentent qu'une fraction minoritaire des évènements de pollutions minérales. "Nos" tempêtes de sables ne sont pas aussi "spectaculaires" que celles qui sont décrites préférentiellement dans la littérature, mais il est certainement plus difficile, et c'est une partie du défi à relever, de modéliser ces tempêtes «ordinaires», d'autant qu'elles doivent, de par leur nombre, participer largement au bilan annuel de masse.

Nous avons, dans un premier temps, étudié les images TOMS du printemps 2005. Les indices d'aérosol TOMS, que nous analyserons plus en détail au paragraphe 3.2.3, signalent un événement de poussière initié dans le désert de Gobi fin Avril 2005. Les effets de ce soulèvement se manifestent sous forme de transport de poussières jaunes (*Kosa*) et sont observés jusqu'au-delà du Japon dans les premiers jours de Mai. Les images du satellite Terra (NASA) embarquant l'appareil d'imagerie MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) (http://earthobservatory.nasa.gov/NaturalHazards/natural_hazards_v2.php3?img_id=12849) montrent un très beau panache de poussières minérales recouvrant le Nord-Est de la Chine le matin du 28 Avril (*figure 3.2*) .

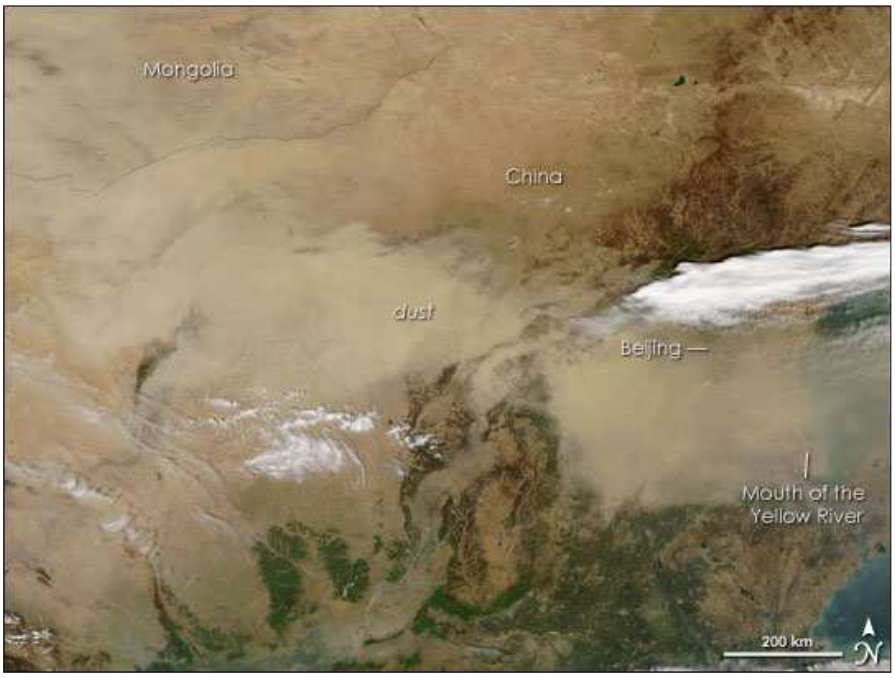


Figure 3.2. – Photographie obtenue par le satellite TERRA-MODIS le 28 avril 2005

Ensuite, nous avons cherché à savoir si les enregistrements des spectrophotomètres du réseau AERONET confirmaient ce panorama général et permettait de distinguer la nature minérale et/ou anthropique des aérosols transportés jusqu'au-dessus des sites AERONET. Parmi les sites du réseau AERONET disponibles sur la période couvrant les journées du 27 Avril au 02 Mai 2005, nous analysons les enregistrements à Dalanzadgab (43°N,104°E), point de mesure en Mongolie situé à proximité des zones d'émissions. Nous utilisons également en Chine, les épaisseurs optiques mesurées à Beijing (39°N,116°E), XiangHe (39°N,116°E) et sur la ville de Liangning (41°N,122°E) située environ à 500 km au Nord Est de Beijing. Shirahama (33°N,135°E) et Osaka (34°N,135°E) sont les seuls sites de mesures d'épaisseurs optiques du réseau AERONET au Japon à ces dates, mais seul le site d'Osaka donne des données à la fois à la fin Avril et au début Mai. Enfin, le site de Gwangju_K-JIST (35°N,126°E) fournit des valeurs d'épaisseurs optiques pour la Corée du Sud. Ces différents sites de mesure sont localisés sur la carte de la *figure 3.3*.

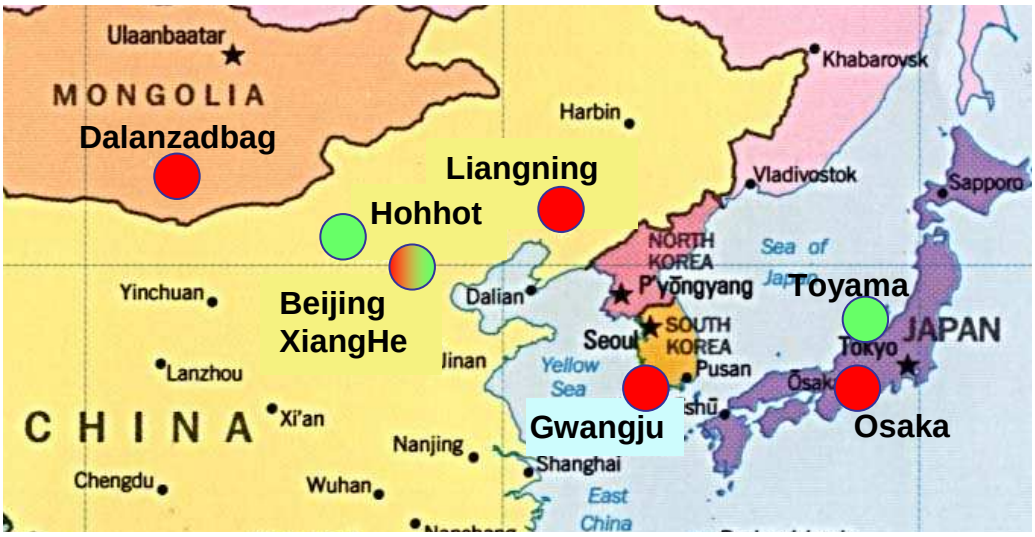


Figure 3.3 – Carte composite localisant les 6 sites AERONET (en rouge et rouge/vert pour les 2 sites de Beijing + XiangHe) retenus dans le but d'estimer les natures des aérosols présents sur site du 28 Avril au 02 Mai 2005. Localisations des villes de Hohhot et Toyama (en vert).

Sur les analyses d'épaisseurs optiques (toutes au niveau 1.0, niveau le moins filtré par le post-traitement) en Chine, des 28, 29 et 30 Avril (*figure 3.4*) on observe très bien la nature typiquement minérale de l'aérosol en suspension. À Dalanzadgab, les épaisseurs optiques sont, pendant ce qui devait être une période de soulèvement de poussières les 28 et 29 Avril, comprises entre 1 et 2. Cela signifie une présence d'aérosol et non un air clair, sans toutefois que l'atmosphère soit saturée de poussière car on atteindrait alors des épaisseurs optiques de l'ordre de 4-5, voir de 8 à 15 pour les tempêtes extrêmement sévères [Qiu and Sun, 1994]. Cet aérosol a une signature spectrale (en particulier le 29 TU) identique à toutes les longueurs d'ondes, ce qui est caractéristique de particules minérales. Avec ces critères semi quantitatifs, on peut distinguer sur les relevés le passage des aérosols minéraux sur Beijing (XiangHe) les 28 et 29, suivi le 30 d'une pollution de nature très différente et probablement d'un mélange d'aérosols d'origine urbaine. La ville de Liangning, qui était le 28 Avril 2005 dans des conditions de pollution urbaine peu importante, n'est atteinte par le panache d'aérosol minéral qu'en date du 29 TU et pour quelques heures seulement, le cœur du transport ayant du passer au Sud de cette région.

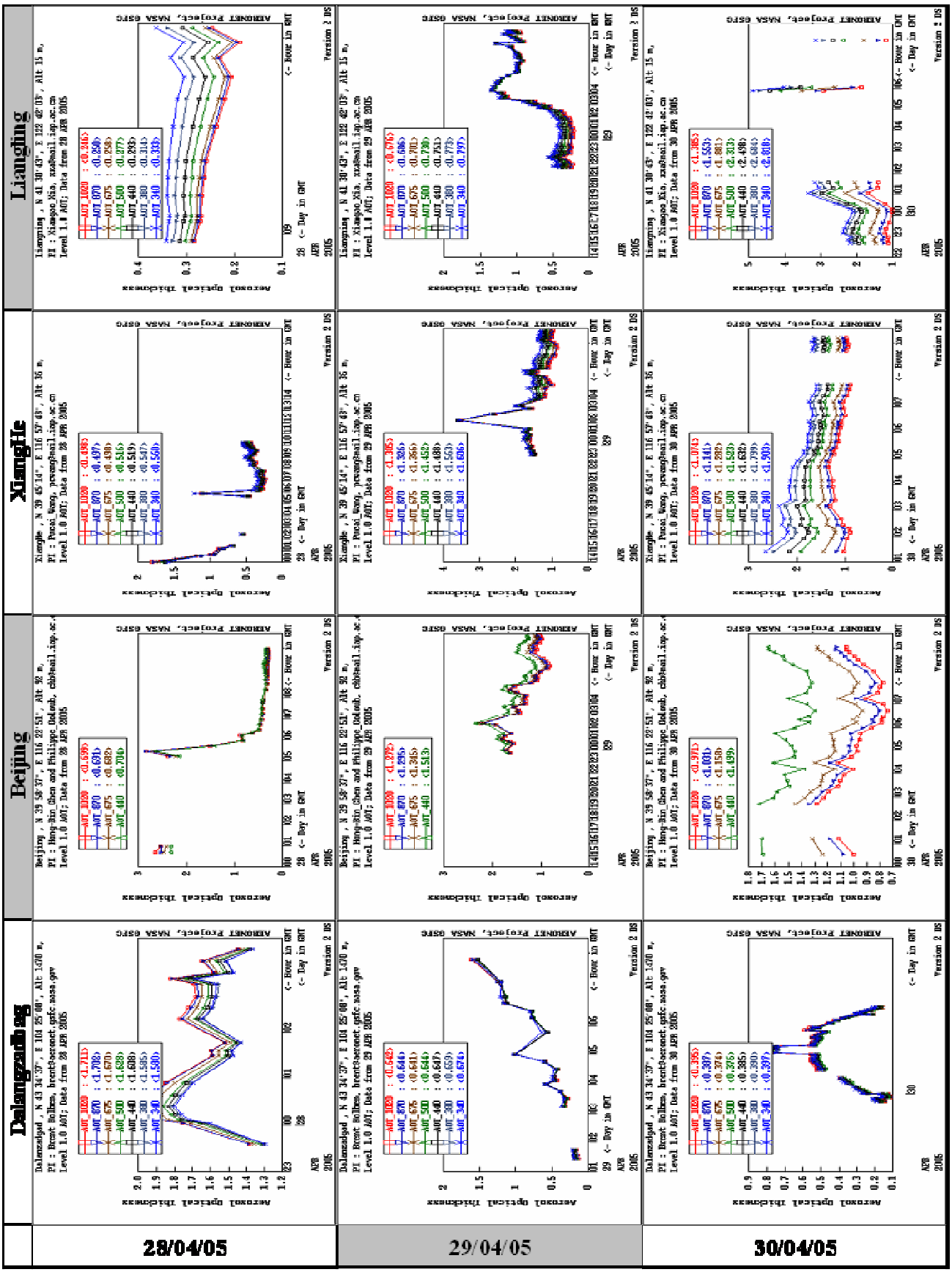


Figure 3.4 – Epaisseurs optiques (niveau 1.0) sur les sites AERONET en Chine et Mongolie, du 28 au 30 Avril 2005.

En ce qui concerne les pays plus à l'Est, Corée et Japon, les historiques d'épaisseurs optiques sont plus délicats à interpréter car ils sont chronologiquement incomplets. Si les épaisseurs optiques en Corée du Sud ne sont symptomatiques d'aucun événement de poussière important, pas plus que d'une pollution anthropique notable, la lecture de la *figure 3.5* permet malgré tout d'envisager l'arrivée de particules minérales sur Osaka autour du 02 Mai 2005.

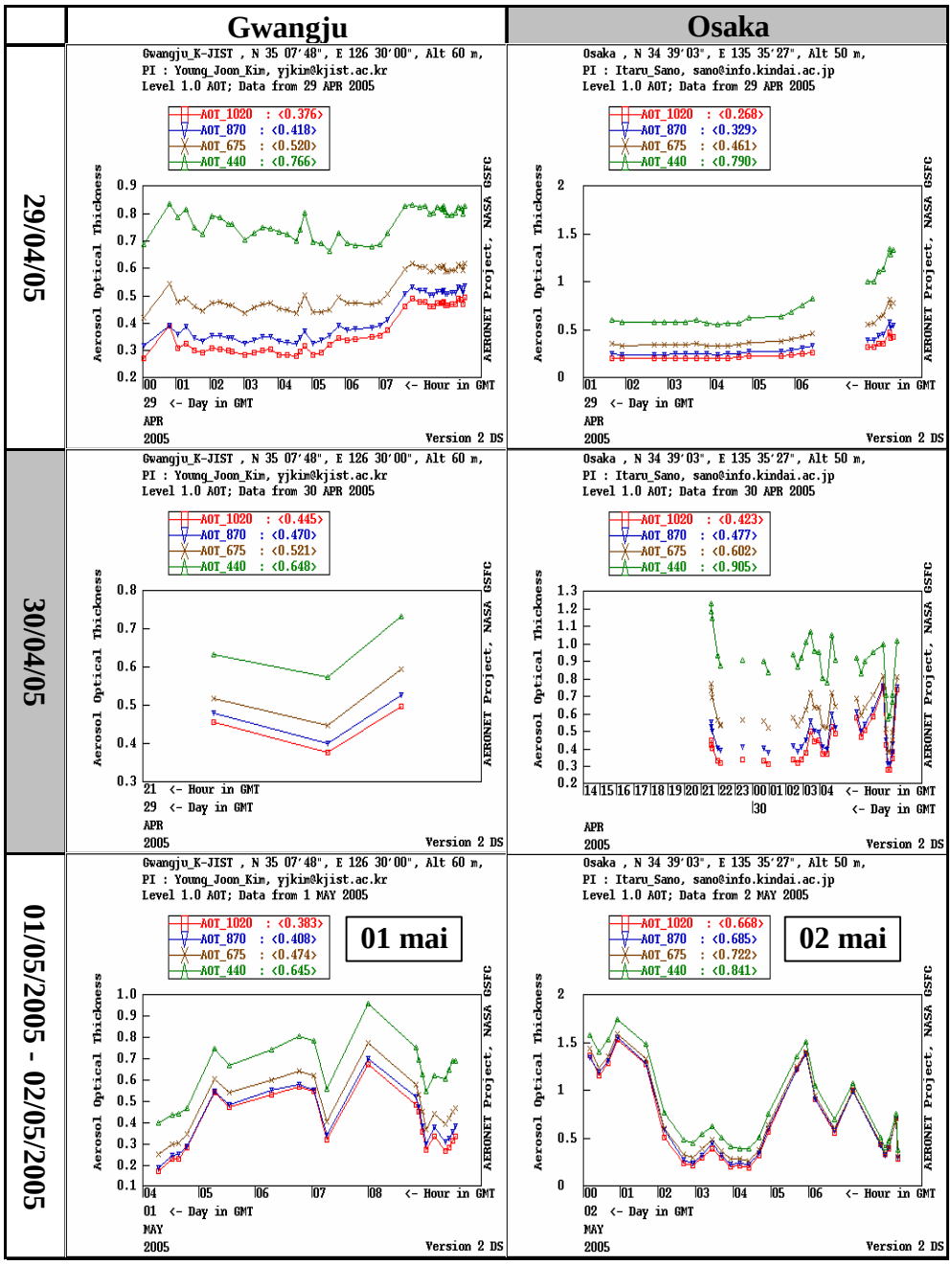


Figure 3.5 – Epaisseurs optiques (niveau 1.0) sur les sites AERONET de Corée et du Japon, du 29 Avril au 01 et 02 Mai 2005.

Nous tenterons d'affiner ces approches radiatives par l'exploitation d'images LIDAR déduites de mesures qui nous ont été aimablement fournies par le professeur Atsushi Shimizu du *National Institute for Environmental Studies* (NIES, http://www.nies.go.jp/ , Ibaraki, Japan). Nous confronterons directement nos résultats de simulation à ces images dans le paragraphe 3.2.4.

Nous disposons également de données de visibilité.

Nous considérons ici une extension géographique bien plus large que celle de la simulation RAMS elle-même afin d'avoir un panorama absolument complet de la situation. Nous englobons 950 stations du réseau mondial d'observations météorologiques. Parmi celles-ci, 732 stations ont été retenues en dernier lieu pour tracer les isocontours de visibilité. Dans le détail, sur les 218 stations non retenues, 128 le sont parce que les visibilités n'y sont pas rapportées ou bien sont trop espacées les unes des autres dans le temps. 52 autres stations proposent des températures inexploitables en données brutes ou en calcul de l'humidité relative et 15 relèvent des vents supérieurs à 60 ms^{-1} (216 $km.h^{-1}$), ce qui jette un voile de suspicion sur les autres valeurs mesurées en ces mêmes lieux. Nous traçons les vecteurs vent horizontal mesurés aux stations, ce qui est une indication précieuse de la réalité des mouvements de masse d'air au niveau du sol, et nous permet, à quelques exceptions près, de voir la distribution géographiquement hétérogène des sites de mesure. A ce propos, on observera que la densité de stations d'observation sur notre zone d'étude est d'autant plus élevée que l'on suit un transect de l'Ouest vers l'Est, c'est-à-dire des zones désertiques vers les zones peuplées.

Les cartes produites par cette méthode présentent les isocontours reliant entre eux les stations météorologiques où la visibilité locale chute d'un égal pourcentage par rapport à la valeur maximale locale normalisée à 1, et ceci pour une diminution d'au moins 50%. Le cœur des isocontours est donc la zone de moindre visibilité, c'est-à-dire la zone où les poussières soulevées sont à priori les plus denses. Sur la frontière Sud Est entre la Chine et la Mongolie, aire géographique où nous portons notre attention, aucune nébulosité n'est suffisamment importante entre le 27 et le 30 Avril pour être susceptible de participer aux baisses locales de visibilité (*figures 3.6* et *3.7*). Les réductions drastiques de visibilité sont très localisées et peuvent être interprétées comme des évènements de poussières minérales en suspension. Le 27 Avril, un épisode se localise vers (45°N,115°E) ce qui concorde avec l'image TOMS révélant d'ailleurs un indice aérosol peu marqué. Le lendemain, en première partie de la journée du 28, l'épisode se localise à la pointe Sud de la frontière Chine-Mongolie, autour de 40-45°N,100-109°E (zone dorénavant appelée "zone 1", *figure 3.10*) ce qui correspond à un

indice TOMS entre 3 et 4 sur une échelle détaillée jusqu'à 4,5. À 12 TU, le 28 Avril, on observe une humidité relative importante ainsi que des précipitations sur la façade océanique de la Russie et au Nord du Japon, accompagnés logiquement d'une baisse significative de visibilité.

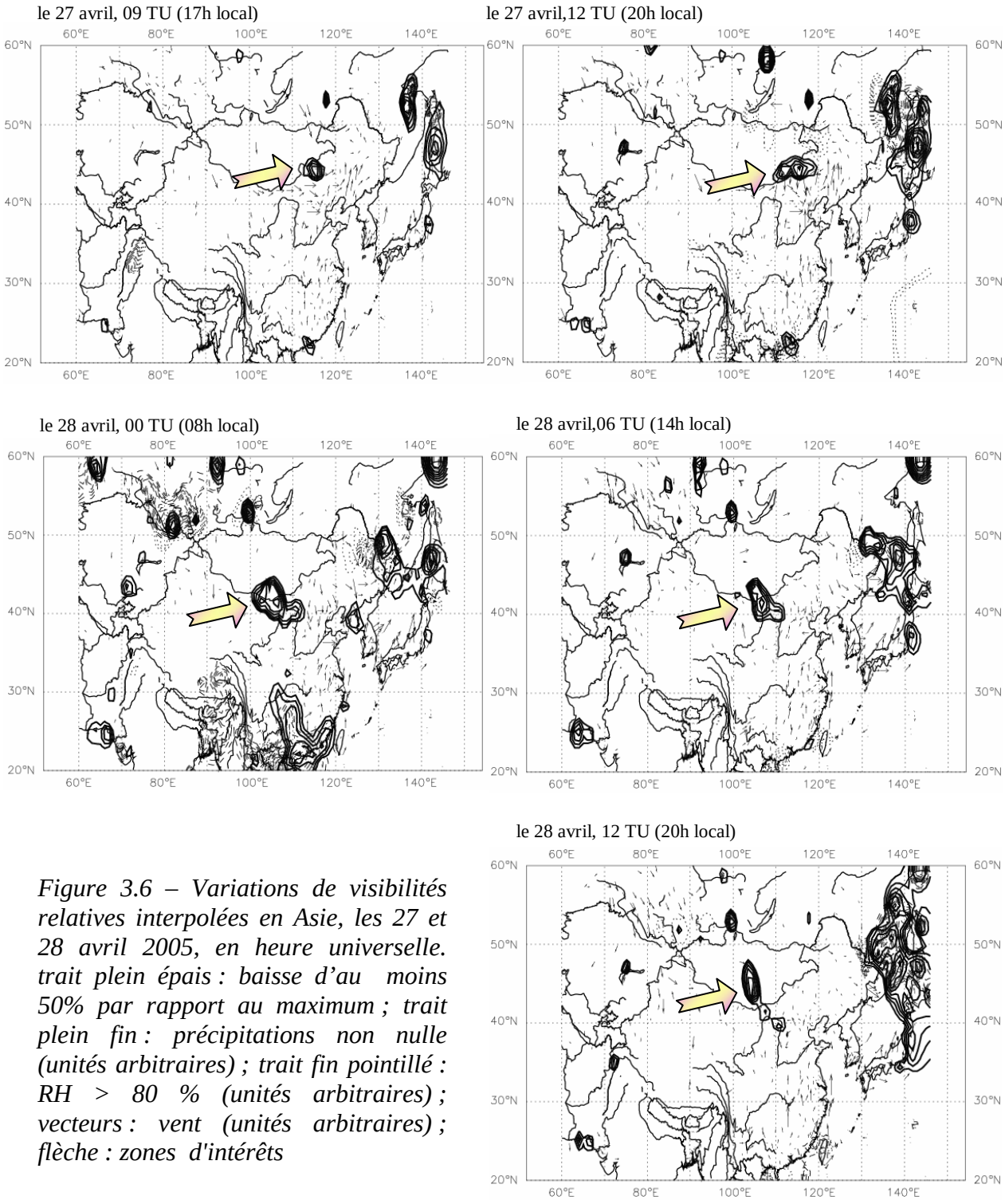


Figure 3.6 – Variations de visibilités relatives interpolées en Asie, les 27 et 28 avril 2005, en heure universelle. trait plein épais : baisse d'au moins 50% par rapport au maximum ; trait plein fin : précipitations non nulle (unités arbitraires) ; trait fin pointillé : RH > 80 % (unités arbitraires) ; vecteurs : vent (unités arbitraires) ; flèche : zones d'intérêts

A la même période du 28 (en début de nuit localement), une baisse de visibilité est détectée en direction du Nord depuis la zone 1. Cette observation, comme les autres du reste, ne doit pas être interprétée de façon systématique comme un transport ou, autrement dit, comme le déplacement d'un panache initié dans les heures qui précèdent. On ne peut pas, et tout particulièrement dans ce cas, conjecturer qu'il s'agisse d'un nouveau soulèvement ou de l'indice du passage d'une masse d'air chargée de particules minérales. Comme le laissent penser les *figures 3.6* et *3.7* et comme on le verra plus loin avec les simulations RAMS, les vents ont été capricieux durant l'épisode étudié et nous serons amenés à discuter cet aspect critique de notre étude.

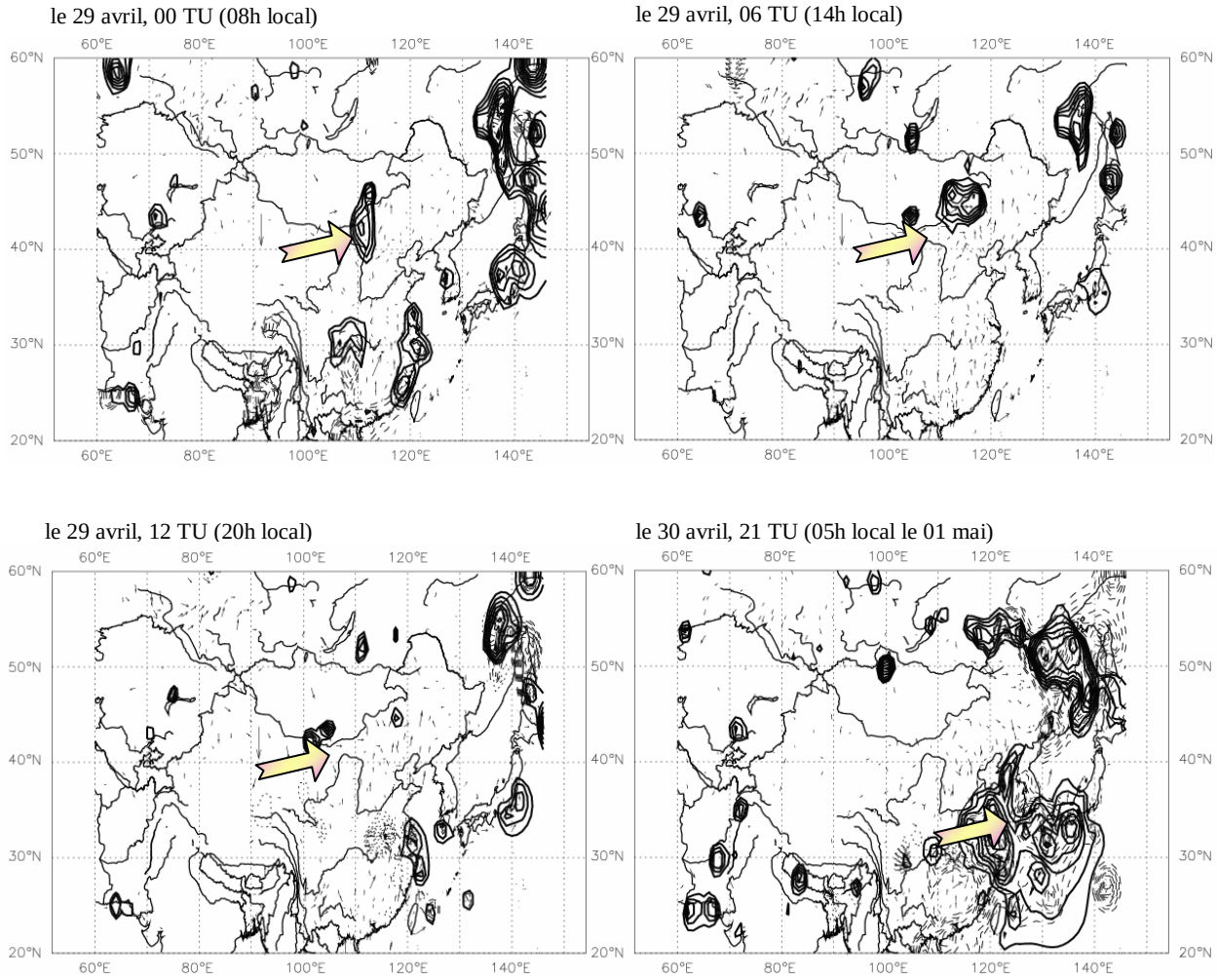


Figure 3.7 – idem fig. 3.6 : Variations de visibilités relatives interpolées en Asie, les 29 et 30 avril 2005, en heure universelle.

Le 29 Avril, c'est à nouveau sur les déserts de Korqin et Otindaq, dans un espace de 42-47°N,110-119°E , noté par la suite "zone 2" (*figure 3.10*), qu'on localise des baisses de visibilité. Au matin du 01 Mai (en heure local) des baisses de visibilité sont importantes entre la Corée du Sud et le Sud du Japon, mais les conditions météorologiques montrent de l'eau condensée en suspension (sous toutes formes d'hydrométéores), il n'y a donc pas d'interprétation possible en terme de seul transport d'aérosol minéral.

Pour conclure quant à nos données de visibilités, on constate qu'elles sont toujours conformes aux images TOMS. Elles présentent ainsi l'avantage de donner un ordre d'idée de l'extension géographique concernée par un événement de tempête de sable toutes les 3 heures alors que TOMS ne donne qu'un seul indice quotidien.

Nous avons procédé aux calculs de quelques rétrotrajectoires. Nous avons considéré 9 villes susceptibles d'être sous l'influence de vents à même de transporter les aérosols. Un premier calcul "remonte le temps" sur 66 heures à partir du 28 00:00TU (08TL), ce qui correspondrait au premier épisode de transport. Un second calcul est lancé à partir des mêmes sites, mais depuis le 29 06:00TU (14TL), date du second transport. On choisit une pression de 950 hPa soit environ 500 m d'altitude au sol comme valeur représentant assez bien une hauteur caractéristique d'une arrivée de poussière sur les 9 villes. Les *figures 3.8* et *3.9* montrent les trajectoires, dans les plans horizontaux et verticaux, des masses d'air étudiées

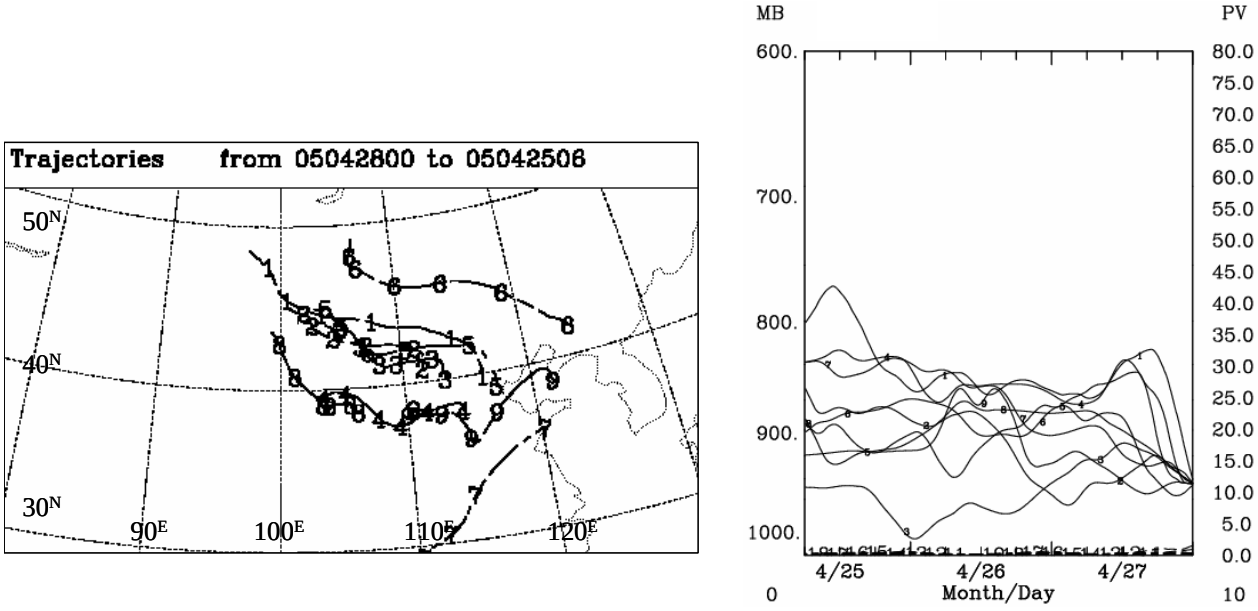


Figure 3.8 – rétrotrajectoires sur 66h à partir de 9 villes en Chine, à 950 hPa depuis le 28 Avril 2005 (08TL). Projection horizontale (3.9.a) et verticale (3.9.b). Codes des villes 1: Beijing, 2: Hohhot, 3: Datong, 4 : Shijiazhuang, 5: Tianjin, 6: Fushun, 7: Qingdao, 8: Yinchuan, 9: Dailan.

On constate pour le 1er épisode, que les masses d'air arrivant sur les 9 villes ont suivi des trajectoires provenant de l' Ouest et du Nord-Ouest ,avec des altitudes comprises entre 950 et 800 hPa, soit entre 500 et 2000 m au dessus du sol, selon les trajectoires. Les rétrotrajectoires du second épisode sont plus dispersées tant horizontalement que verticalement. Les trajectoires 1, 5, 6 et 9 sont clairement initiées au Nord (et Nord Ouest au-delà de 48 h), les villes continentales (2, 3, 8) restent sous l'influence de vents d'Ouest, enfin Shijiazhuang (4) est dans une zone de circulation locale et Qingdao (7) se révèle, aussi bien pour le 1er que pour le second épisode, soumise à des influences Sud-Ouest, et ne sera donc pas concerné a priori par les transports de poussières.

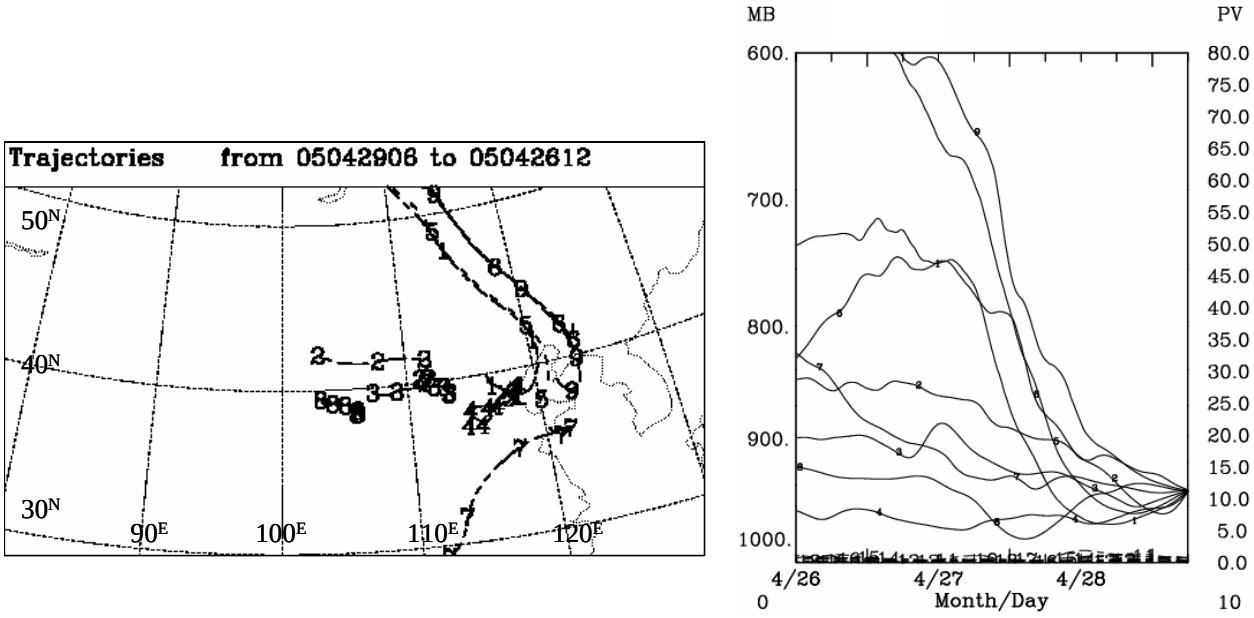


Figure 3.9 – rétrotrajectoires sur 66h à partir de 9 villes en Chine, à 950 hPa depuis le 29 Avril 2005 (14TL). Projection horizontale (3.10.a) et verticale (3.10.b). Codes des villes 1: Beijing, 2: Hohhot, 3: Datong, 4 : Shijiazhuang, 5: Tianjin, 6: Fushun, 7: Qingdao, 8: Yinchuan, 9: Dailan.

Une dernière base de données susceptibles de participer à la validation de nos simulations est constituée par les archives d'indices de pollution de l'air API (Air Pollution Index) mises en ligne par l'organisme gouvernemental chinois SEPA (State Environmental Protection Administration). A priori, ce sont des données « grand public », mais nous avons cependant cherché à en déduire un indicateur, probablement assez grossier, de la concentration urbaine en aérosols. Une lecture rapide des données d'API

(http://www.sepa.gov.cn/english/air_s.php3) nous a appris que ce réseau d'information est sensible aux épisodes de poussière. Un exemple de l'usage de ces API fera l'objet d'un paragraphe particulier au 3.2.4.

3.2.2 – Adaptation du cadastre et paramétrisation RAMS

Le cadastre de base des états de surface est actualisé, en terme d'érodabilité, en fonction du couvert neigeux de la fin Avril 2005. Comme les zones enneigées sont essentiellement limitées aux reliefs on obtient de fait une carte (*figure 3.10*) des érodabilités réelles "superposables" à toutes les classes de sols envisagées. Sur cette même carte nous avons reporté les zones dénommées 1, 2 et 3. Cette dernière zone recouvre tout le Nord –Est du cadastre (38-50°N, 94-119°E), y compris les zones 1 et 2 mais aussi certaines cellules non émissives).

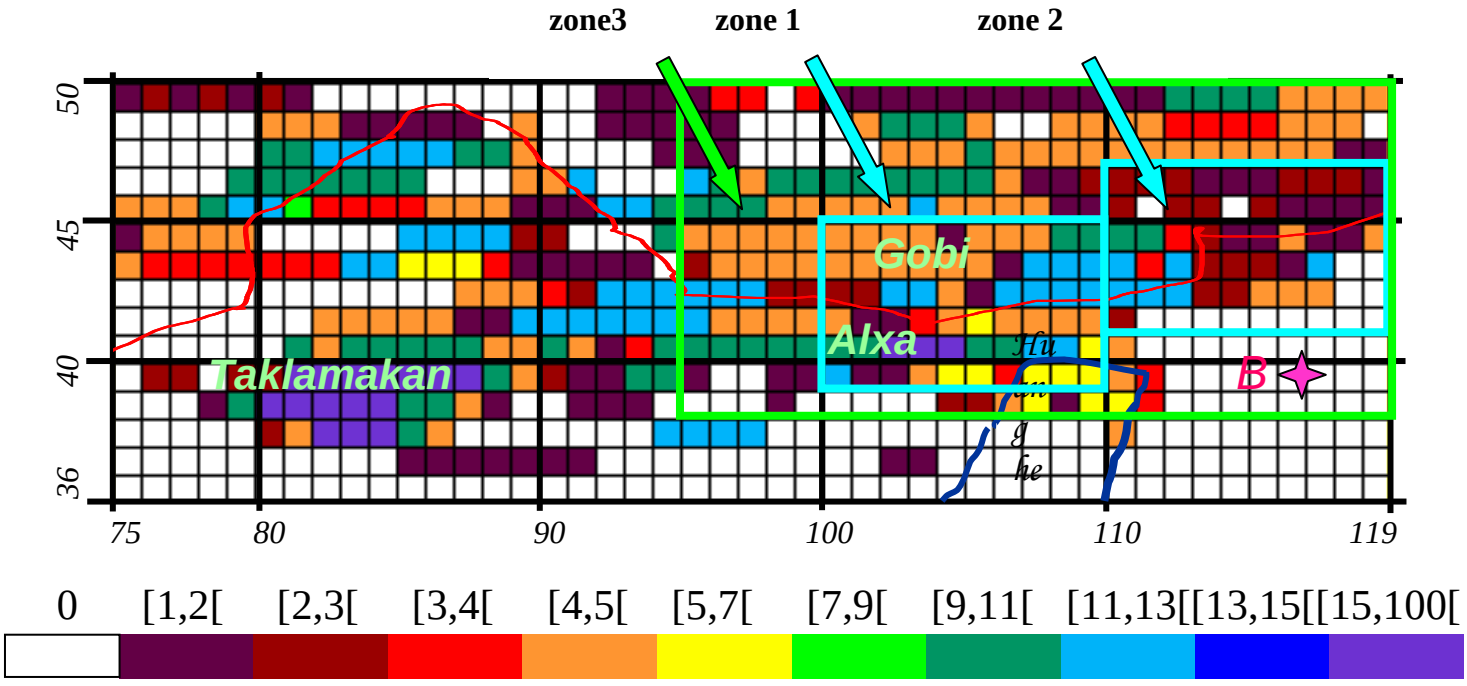


Figure 3.10 – carte des érodabilité pour avril 2005, pour rappel, la carte des types de sol est sur la figure 2.11; localisation des zones nommées "zone 1 ,t"zone 2" et « zone 3 » au paragraphe 3.2.1

La zone de simulation RAMS est résolue avec des cellules de 25×25 km^2 dans une grille comportant 235 cellules selon les longitudes et 95 cellules selon les latitudes. La grille RAMS est centrée sur un point de coordonnées (40°N,108°E) et recouvre une aire géographique d'angles opposés en diagonale (20°N,60°E) "coin inférieur gauche", et (150°N,60°N) "coin supérieur droit".

Le calcul de la simulation débute le 25 Avril 2005 à 00TU afin de laisser au moins 48 heures à l'établissement des champs. Le pas de temps utilisé dans le calcul est de 10 secondes. Cette faible valeur est rendue nécessaire par la présence du relief sévère au sud de la zone, une circonstance qui est peu propice à la stabilité des calculs si le pas de temps est élevé. La simulation s'effectue sur 64 processeurs parallélisés et prend environ 30 heures pour se réaliser. Le calcul est effectué sur la machine SGI du CINES (Centre Informatique National de l'Enseignement Supérieur) à Montpellier.

3.2.3 – Confrontation d'ensemble des sorties du modèle aux données d'observation satellitaire

Ce paragraphe présente la chronologie des simulations, analyse et compare ces résultats aux observations. S'il peut paraître long et répétitif parfois, son but est d'analyser sans complaisance la qualité des résultats du modèle sur la totalité de la zone étudié, afin de qualifier l'ensemble de la simulation, d'en montrer les possibilités et les limites, ce dernier point étant destiné à améliorer les performances du modèle pour la suite des travaux. Le paragraphe qui suivra poursuit le même objectif, mais cette fois en détaillant les résultats sur des sites particuliers. Afin de faciliter les comparaisons des produits RAMS, calculées en référence au temps universel TU, avec les observations qui sont – elles- datées en temps local, nous rappelons que les résultats relatifs aux dernières heures TU d'une journée correspondent en réalité à ceux des premières heures TL du lendemain. Si on compare les horaires TU et le temps local au méridien de Beijing, le décalage horaire est d'environ 8 heures (TL ≈ TU + 8h) ; dans les zones plus à l'Ouest en Chine on n'aura que TL ≈ TU + 7h, alors qu'au Japon, TL ≈ TU + 9h. Dans ce manuscrit, pour ne pas surcharger la présentation, on ne montre que les situations représentatives d'extrema ou qui concernent, des intervalles, des débuts, et/ou des fins de situations représentatives des phénomènes étudiés.

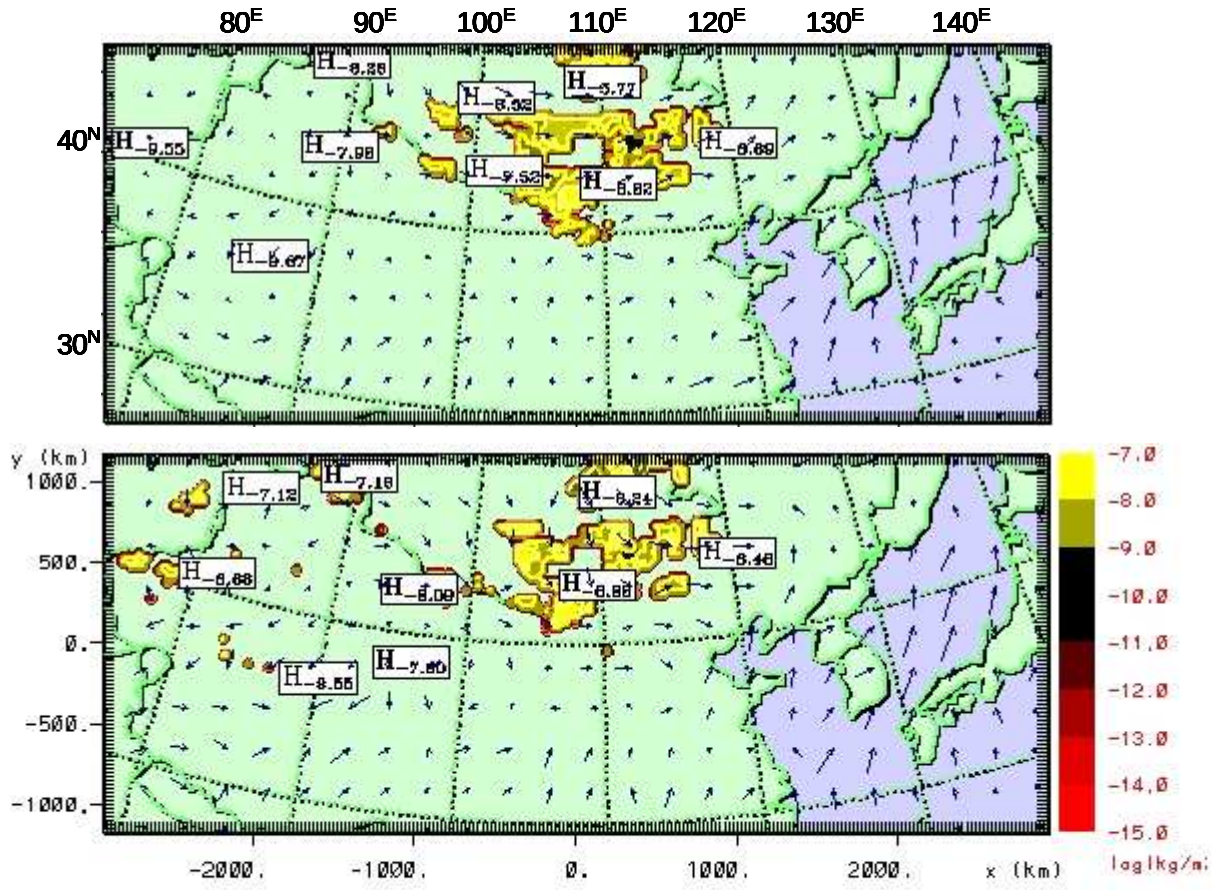
On a superposé les vents calculés par RAMS sur la plupart des cartes de résultats afin de compléter l'analyse de ces cartes et d'amorcer une discussion sur la sensibilité du modèle de soulèvement à ces vents. Les vents lus dans les données de surface et représentés sur les

cartes de visibilité (*figures 3.8 et 3.9*) sont représentés par des vecteurs tracés *à partir* des stations de mesure. A l'inverse, les vents RAMS sont représentés par des vecteurs qui pointent *en direction* de l'élément de grille où ils ont été calculés. Par souci de clarté, on extrait 1 point sur 10 parmi les 235 points de calculs longitudinaux, et de même 1 point sur 10 parmi les 95 cellules de chaque méridien.

- Les flux d'émission dans les zones sources et les vents calculés

Les *figures 3.11.a, b, c* et *d* présentent les répartitions spatiales des flux calculés pour les dates (locales) des 27, 28, 29 et 30 Avril 2005 respectivement. Nous comparerons ces flux aux visibilités, mais précisons, dans un premier temps, les répartitions géographiques de ces flux à l'aide des ordres des flux maximaux (valeurs en logarithmes de $kg.m^{-2}.s^{-1}$ sur les cartes, converties en $mg.m^{-2}.s^{-1}$). Par ailleurs, le lecteur est invité à se référer au § 2.1.2 pour les généralités des ordres de grandeurs de flux d'émission minérales:

- Le 27 Avril à 09 TU et 12 TU, en fin d'après-midi et début de soirée local , une baisse de visibilité relative était repérée vers 45°N,115°E, (*figure 3.8*). A 03 TU, le modèle calcule un flux maximal peu intense vers 45°N,118°E ainsi qu'une autre émission sur la frontière Chine-Mongolie (*figure 3.11.a*). Les flux les plus importants sont localisés à l'extrême Nord de la zone de simulation et s'élèvent à 1,70 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ à 03 TU et à 0,57 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ à 12 TU. L'ensemble des flux correspond à des vents n'excédant pas une dizaine de mètres par seconde.
- Le 28 Avril nous est signalé un épisode intense, par les images TOMS et MODIS, ainsi que par l'analyse des visibilités. Notre flux modélisé atteint, à 00 TU, un maximum de 1.23 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ (*figure 3.11.b*).
- Le 29 Avril en milieu de journée, les vents orientés Ouest et Sud Ouest (i.e. qui proviennent de ces directions) sur une large zone nommée « zone2 » (42-47°N,100-119°E) sont suffisants pour initier des flux importants sur cette zone (flux supérieurs à 1,70 $mg.m^{-2}.s^{-1}$) comme on peut le voir en détail sur la *figure 3.11.c*. Des flux sont également calculés sur la ceinture formée par la partie Ouest de la frontière Chine-Mongolie, avec un maximum de l'ordre de 2 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ vers 45°N,90°E. Ces derniers phénomènes ne sont pas observés en terme de chute de visibilité, en revanche ceux de la zone 2 sont conformes aux analyses de visibilité (*fig. 3.9*).



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-27-1200.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	flumas-log (log(kg/m2/s))	-16.00	-6.843	1.000	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.8205E-01	17.64		

Figure 3.11.a –Flux d'aérosol minéral et champ des vents produits par RAMS à 03 TU (haut) et 12 TU (bas) le 27 Avril 2005 (14 TL) .
vents à 03 TU : minimum : 0.10 m.s^{-1}, maximum : 20.7 m.s^{-1}.

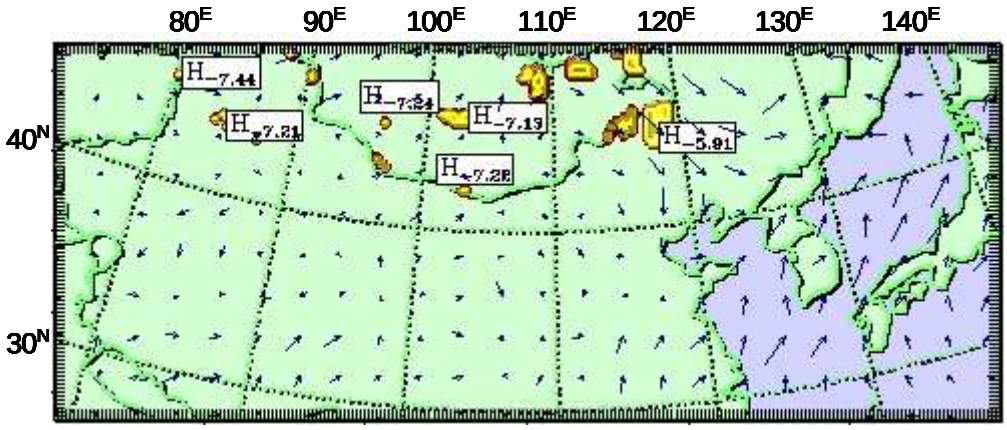


Figure 3.11.b – Idem 3.11.a , à 00 TU le 28 Avril 2005 (08 TL) .
flux maximal : 1,23 mg.m^{-2}.s^{-1}
vent minimal : 0,12 m.s^{-1} ; vent maximal : 18,00 m.s^{-1}.

- Le 30 Avril à 21 TU, c'est-à-dire en fin de nuit le 01 Mai au matin, on calcule un flux d'émission à 0.49 $mg.m^{-2}.s^{-1}$ qui se trouve circonscrit aux déserts de Korqin et Hulun Buir. L'aspect prédominant de l'information réside dans la direction Est et Sud Est de vents en Mongolie comme initiateurs de ces émissions d'aérosols (*figure 3.11.d*). Les vents calculés au même instant sur les bordures maritimes sont beaucoup plus orientés vers le Nord, et nous verrons que ces différences de convergences influenceront le transport d'aérosols en direction du Japon.

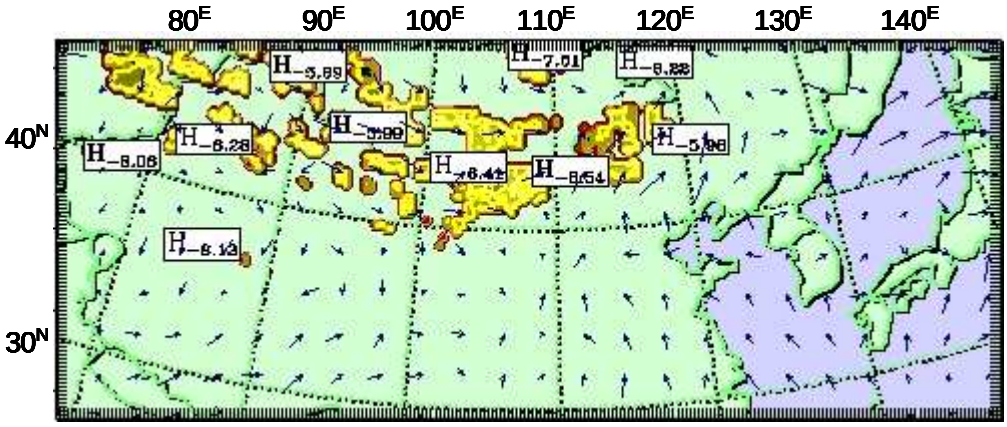
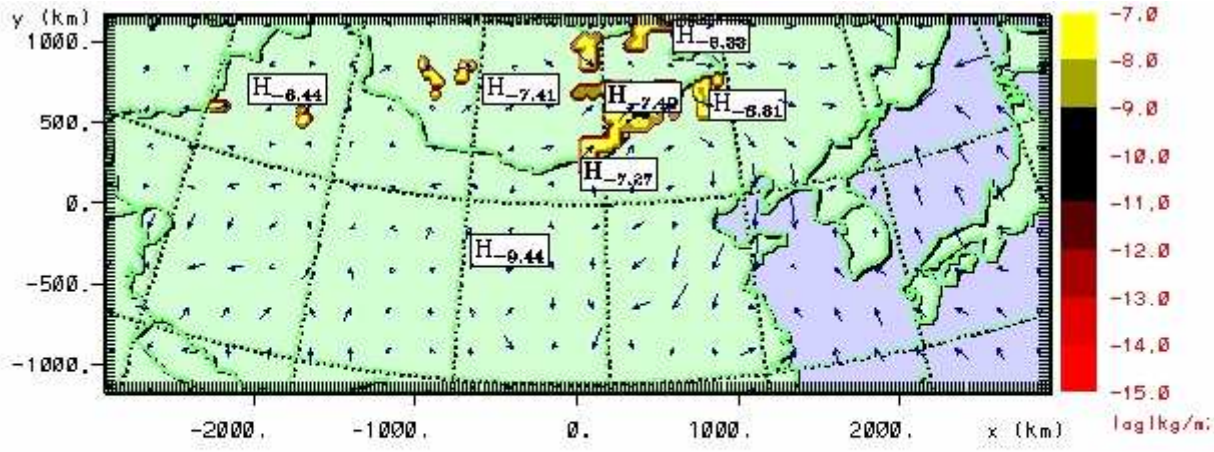


Figure 3.11.c - Idem 3.11.a , à 06 TU le 29 avril 2005 (14 TL) .
vent minimal : 0,06 $m.s^{-1}$; vent maximal : 16,11 m.s



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-30-2100.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	flumas-log (log(kg/m2/s))	-16.00	-6.331	1.000	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.2874E-01	19.64		

Figure 3.11.d – Idem 3.11.a , à 21 TU le 30 Avril 2005 (05 TL le 01 Mai) .
vent minimal : 0,03 $m.s^{-1}$; vent maximal : 19,64 $m.s^{-1}$.

Pour illustrer la manifeste variabilité, tant spatiale que temporelle, des processus d'émission éolienne, nous présentons, sur les *figures 3.11.e* et *3.11.f*, une chronologie des flux de masse pour les zones appelées 1 et 2.

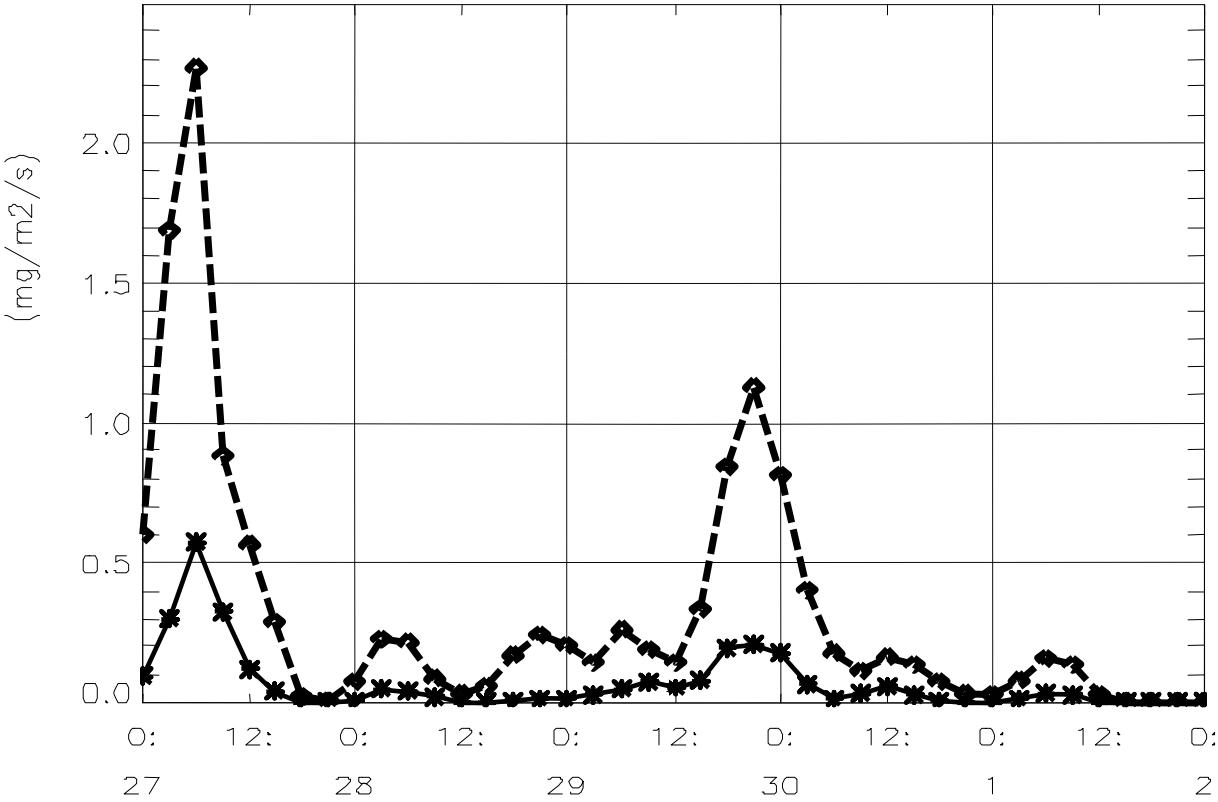


Figure 3.11.e : Historique des flux de masse sur la zone 1. étoiles-traits : moyennes zonales, losanges-pointillés : maxima zonaux. Maxima instantanés : $mg.m^{-2}.s^{-1}$. La moyenne zonale instantanée est multipliée par 10 afin d'être lisibles sur la même échelle que celle des flux instantanés

Les zones 1 et 2 recouvrent des surfaces équivalentes, d'environ 440.000 km^2 chacune, et sont toutes deux zones sources. Nous recherchons et extrayons à l'intérieur de ces zones le flux maximal calculé toutes les 3 heures et nous calculons aussi la moyenne des flux d'émission sur toute la zone aux mêmes instants. Il apparaît immédiatement sur ces courbes une extrême variabilité temporelle des flux à l'échelle de la journée, variabilité temporelle qui, combinée à la très forte variabilité spatiale, et ce même à l'intérieur des zones "globalement" productives comme les zones 1 et 2, souligne la difficulté à rendre compte de la réalité de terrain, en particulier pour des événements fugaces comme le sont la plupart des tempêtes de sable.

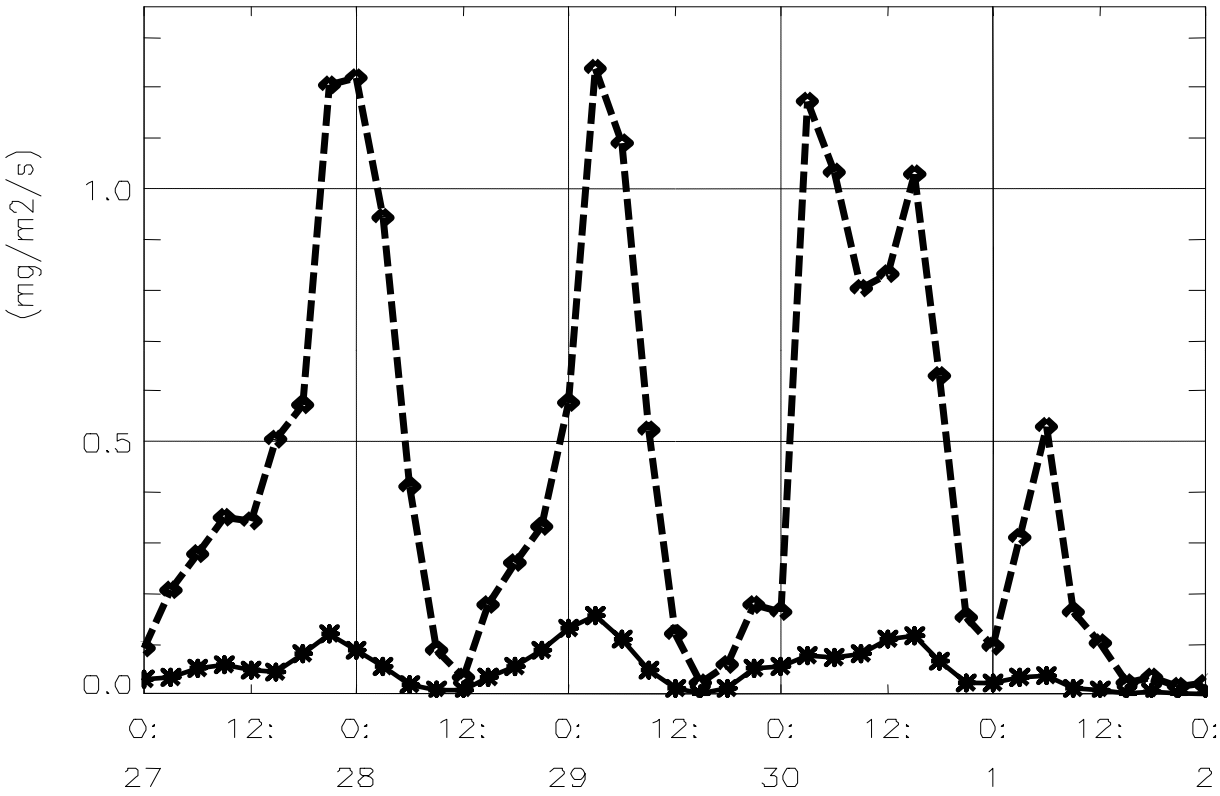
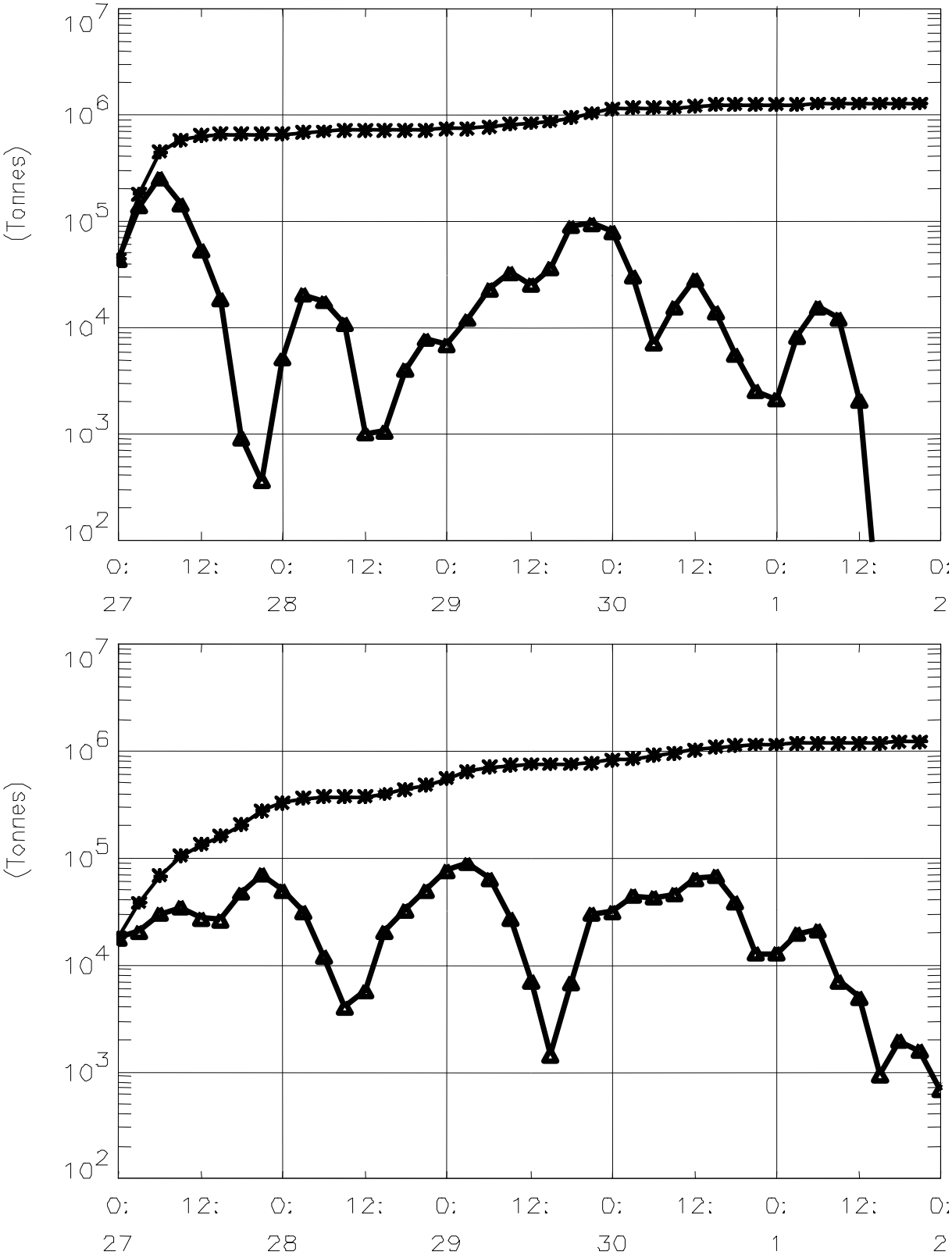


Figure 3.11.f : idem Figure 3.11.e, pour les flux émis par la zone 2.

Nous avons converti les flux de masse en quantités de masses émises proprement dites. Les figures *3.11.g* et 3.*11.h* montrent les quantités de matière, en tonnes soulevées, par palier de flux considérés comme stationnaires durant des intervalles de 3 heures consécutives. On superpose à ces quantités instantanées, la somme totale (en tonnes également) de matière mise en suspension depuis le 27 à 00TU. Là encore, la variabilité – à tout le moins temporelle sur ces 120 heures simulées – est notable. Les quantités de poussières en suspension produites varient d'un facteur 10 à 100 en moins de 6 heures. On remarquera par ailleurs, en particulier en zone 2, une tendance à un cycle diurne trouvant son maximum en milieu de journée en temps local. Pour estimer la totalité des quantités de poussière émise par toute la partie orientale des déserts de Chine et de Mongolie, nous avons calculé le bilan d'émission de la zone 3. Le *tableau 3.I* résume en quelques statistiques l'évolution temporelle des quantités de poussières émises. Signalons que les zone 2 et 3 contiennent des parties de cadastre non émissives (§ *fig 3.10*), et que par conséquent les valeurs moyennes qui y sont calculées sont à considérer comme des valeur basses. L'écart type à la moyenne des quantités émises pendant 3 heures sur chaque zone est de l'ordre de grandeur de la valeur moyenne elle-même.



Figures 3.11.g (haut) et 3.11.h (bas) : historiques des quantités de masse émises sur la zone 1 (3.11.g) et la zone 2 (3.11.h). Étoiles : quantités intégrées depuis le 27 OO TU, triangles : quantités instantanées produites pendant 3 heures consécutives.

zone	localisation des 3 zones sources	quantité totale produite en 5 jours	quantité maximale produite en 3 heures	moyenne des quantités produites en 3 heures	écart type des quantités produites en 3 heures
1	(40-45N, 100-109E)	1.27	0.259 (27 _ 06TU)	0.031	0.051
2	(42-47N, 110-119E)	1.20	0.090 (29 _ 03TU)	0.029	0.023
3	(38-50N, 94-119E)	5.50	0.456 (27 _ 06TU)	0.134	0.111

Tableau 3.I : grandeurs caractéristiques, en Mégatonnes, des quantités d'aérosol minéral produites par les zones 1, 2 et 3 du 27/04/05 (00TU) au 02/05/05(00TU)

- Les charges colonne en poussières minérales. Comparaison avec les images TOMS.

La « charge colonne » en n'importe quel élément (minéral, aérosol de pollution etc.) est également désignée par « concentration intégrée » car c'est le résultat de l'intégration verticale des concentrations calculées sur l'ensemble des 30 niveaux du modèle. Le résultat, donné ici en $g.m^{-2}$, est une indication de la densité surfacique en aérosol comme peuvent la caractériser par une visée au nadir les images TOMS ou MODIS (ces dernières dans le visible). Plus la charge colonne est élevée, plus la densité en aérosol est caractérisée par un indice TOMS élevé [Washington et al., 2003] et donc par une épaisseur optique croissante [Solmon et al., 2006]. Ainsi, les isocontours des colonnes d'air les plus chargées en aérosol traceront une indication fiable du contour du panache de poussière repéré par les satellites.

A nouveau, on propose quelques produits chronologiques de simulation à comparer aux images diurnes des satellites, ainsi qu'aux relevés des spectrophotomètres AERONET. La comparaison aux images TOMS est évidemment qualitative car celle-ci donne une seule situation diurne. Comme nous ne connaissons pas l'instant exact de cette « photographie » TOMS, nous nous contentons de la comparer aux résultats de simulation de charge colonne correspondant au milieu de la journée, vers 11 TL (soit vers 03TU).

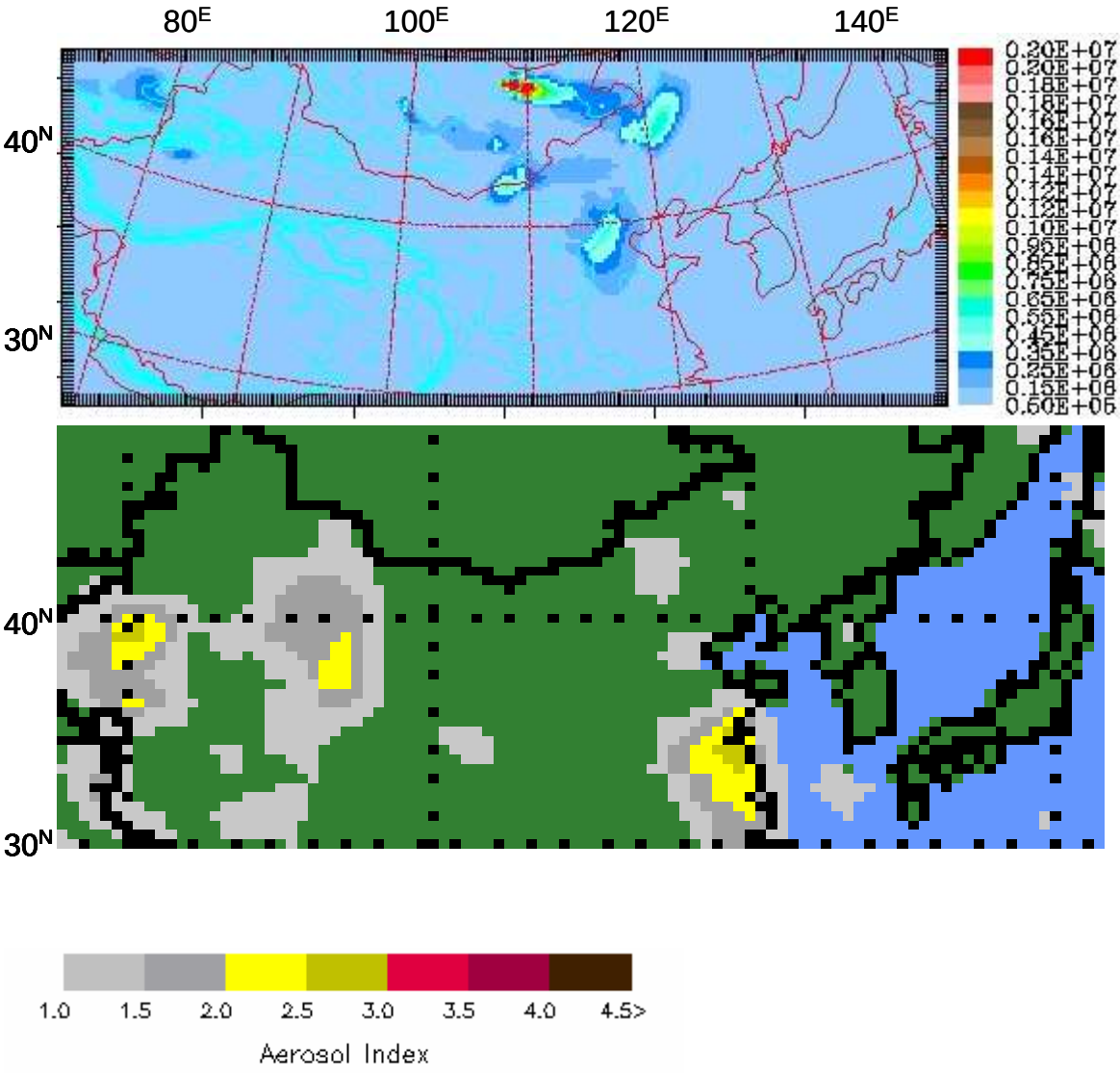


Figure 3.12.a – Masse en aérosol minéral intégrée verticalement, ou « charge colonne », (échelle de couleurs en µg.m^{-2}), et champ des vents produits par RAMS durant la journée locale du 27 avril 2005 (valeurs calculées pour 03 TU). maximum zonal à 03TU : 3,53 g.m^{-2} ; Comparaison avec l'indice d'aérosol (AI) TOMS (image du bas).

- Le 27 Avril l'image TOMS (*fig 3.12.a*) révèle un indice aérosol entre 1 et 1.5 répartie en deux zones entre la frontière Chine-Mongolie (vers 110°E, au niveau de la zone 1) et Beijing. Ces colonnes d'aérosols porteraient, selon nos calculs, une charge intégrée en poussières minérales de 0.40 g.m^{-2} vers 11 TL. Des indices TOMS dépassent 2 unités entre Beijing et Shangaï au Sud, et au niveau du Taklamakan et de l'*Hexi Corridor* à l'Ouest. Pour les premiers, nous ne retrouvons pas par le modèle de charge colonne en minéral qui serait à elle seule représentative de cet indice. Pour les seconds, seule la partie Nord Ouest du Taklamakan est prise en compte par nos calculs, avec une faible densité, de

l'ordre de 0.30 g.m^{-2}. Notre source localise la charge colonne la plus élevée (supérieure à 3.50 g.m^{-2}) au Nord et à l'Est de la Mongolie.

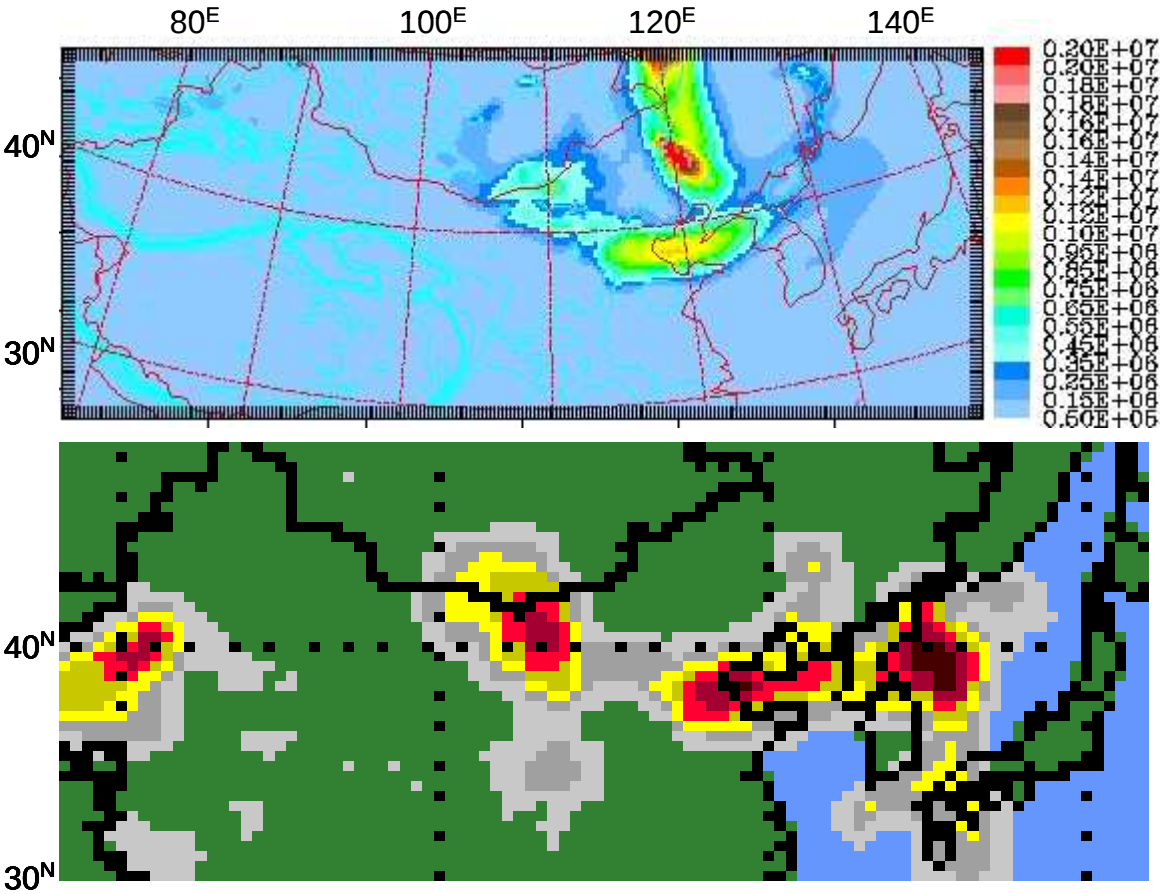


Figure 3.12.b – Idem 3.12.a pour la journée locale du 28 avril 2005 (03 TU). maximum zonal à 03TU : 2,26 g.m^{-2}

- Le 28 Avril l'image TOMS (*figure 3.12b*) présente deux "yeux" (des indices concentriques), l'un en Mongolie Intérieure et l'autre au Sud Ouest de Beijing. L'image MODIS (*fig 3.2.b*) montre ces deux panaches accolés. L'image TOMS révèle de plus un indice d'aérosol significatif, mais de moindre intensité que les deux autres, sur le continent au Nord de la Mer de Chine, au Sud Est du désert de Korqin (*fig 2.6*). Les isocontours des charges colonnes retrouvent très bien ce dernier épisode de moindre intensité, issu de la zone 2. RAMS retrace également très bien "l'œil droit" observé sur la région de Beijing. Ces deux zones sont soumises à des vents de surface calculés comme étant supérieurs à 10 m.s^{-1}.

En revanche, la partie Ouest des images est moins bien décrite par les isocontours des concentrations intégrées. On retrouve certes la zone 1 couverte par le nuage de poussières, mais la charge colonne est peut-être un peu trop faible (au plus 1 $g.m^{-2}$) pour présenter une image TOMS d'indice aérosol supérieur à 3 (*fig. 3.12.b*) si on la compare qualitativement à un indice aérosol TOMS supérieur à 3 sur l'"œil droit" où l'on calcule vers Beijing une masse verticale cumulée comprise entre 1.50 $g.m^{-2}$ (à 08 TL, figure non montrée) et 1.30 $g.m^{-2}$ (à 11 TL).

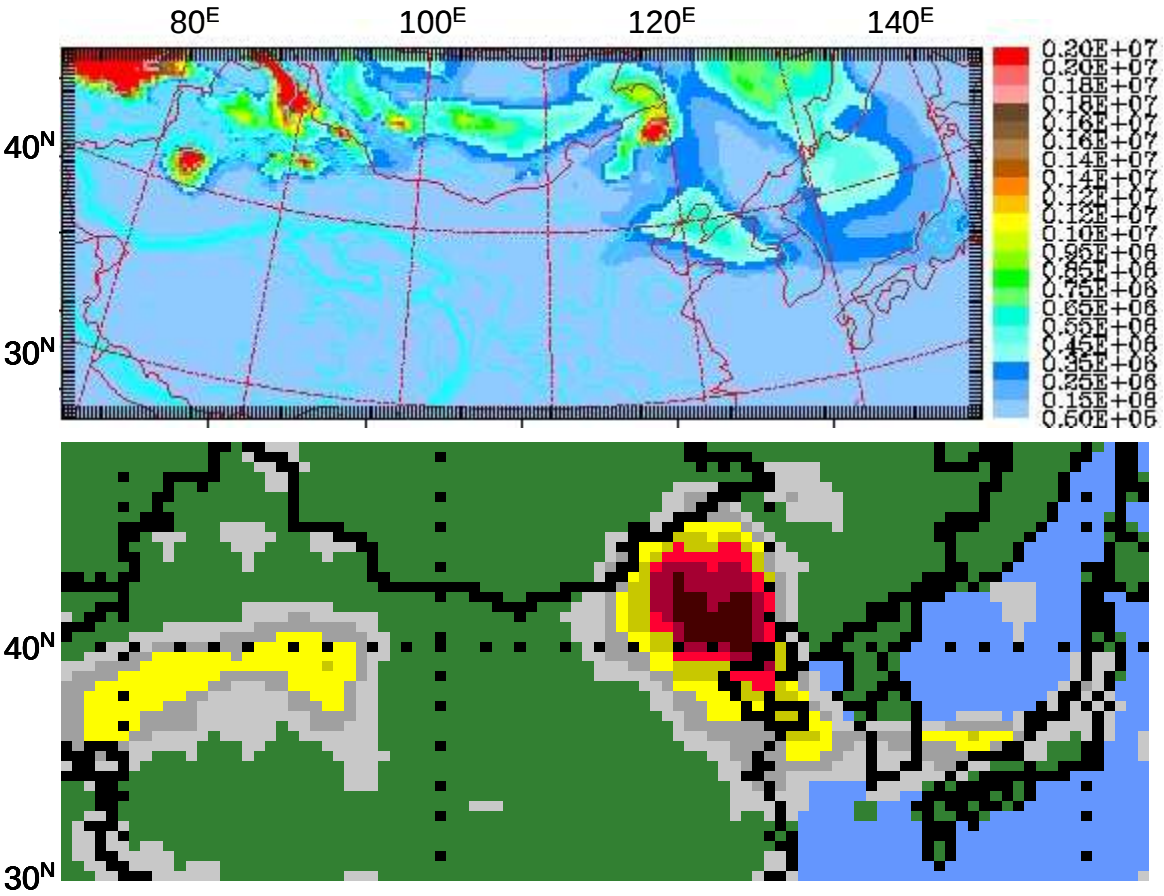


Figure 3.12.c – Idem 3.12.a pour la journée locale du 29 avril 2005 (03 TU). maximum zonal à 03TU : 6,43 $g.m^{-2}$

- Le 29 Avril, un évènement très marqué à lieu dans le Xinjiang, d'après nos calculs au Nord du Taklamakan et dans le désert du Gurbantunggut (*fig 3.12.c*). Cet évènement engendre des charges colonne très importantes, supérieures à 6,5 $g.m^{-2}$ en zone source. C'est en accord à la fois avec l'image TOMS (mais semble élevé en quantité par rapport à celle-ci) et avec la

connaissance que l'on a des transports de poussières pouvant atteindre des altitudes élevées en ces lieux [Sun et al., 2002], ce qui tendrait à justifier une telle charge colonne. Comme les vents sont orientés vers le Sud, on peut estimer que seule une faible part de ce soulèvement traversera l'*Hexi Corridor* en direction de l'Est et se mélangera éventuellement aux panaches modélisés issus directement de l'Est de la Chine.

Dans le même temps, on restitue bien (qualitativement du moins), là encore, les images TOMS à indices élevés (indice TOMS supérieur à 3 au Nord-Est - zone 2) de la Chine et sur toute la partie Nord-Est de la simulation en général, avec une charge colonne dépassant les 2 g.m^{-2} en milieu de journée.

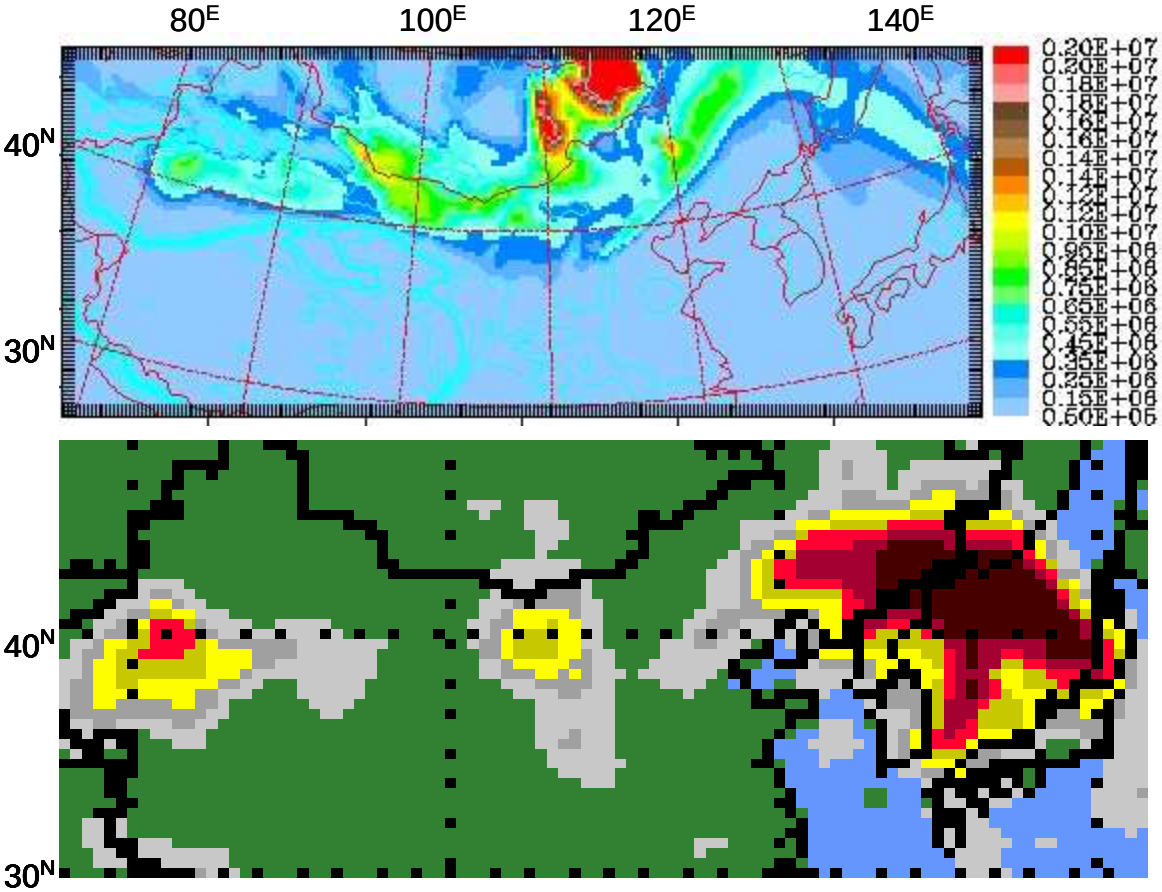


Figure 3.12.d – Idem 3.12.a pour la journée locale du 30 avril 2005 (03 TU). maximum zonal à 03TU : 5,54 g.m^{-2}

- Le 30 Avril (*figure 3.12.d*) la tendance au déplacement de la colonne d'aérosol vers le Japon n'est qu'en partie retrouvée par la charge colonne calculée. Au vu de l'accroissement de l'extension géographique de l'indice TOMS supérieur à 4, on peut supposer qu'un apport en aérosol de pollution s'est inséré dans le transport observé: les zones émissives en aérosols minéraux semblent avoir été pour l'essentiel déjà dépassées par l'image du 29, et la différence entre notre colonne simulée et l'image TOMS résulterait du mélange de l'aérosol minéral avec un aérosol de nature anthropique. Cette hypothèse sera analysée plus avant au chapitre 4.
- Le 01 Mai (*figure 3.12.e*), nous retrouvons par les charges colonnes calculées, les images TOMS du Taklamakan ainsi que la présence plus diffuse d'aérosol en Chine; par contre, nous échouons à expliquer par la seule charge en minéral l'image TOMS qui montre que le nuage d'aérosol repéré la veille a dépassé le Japon.

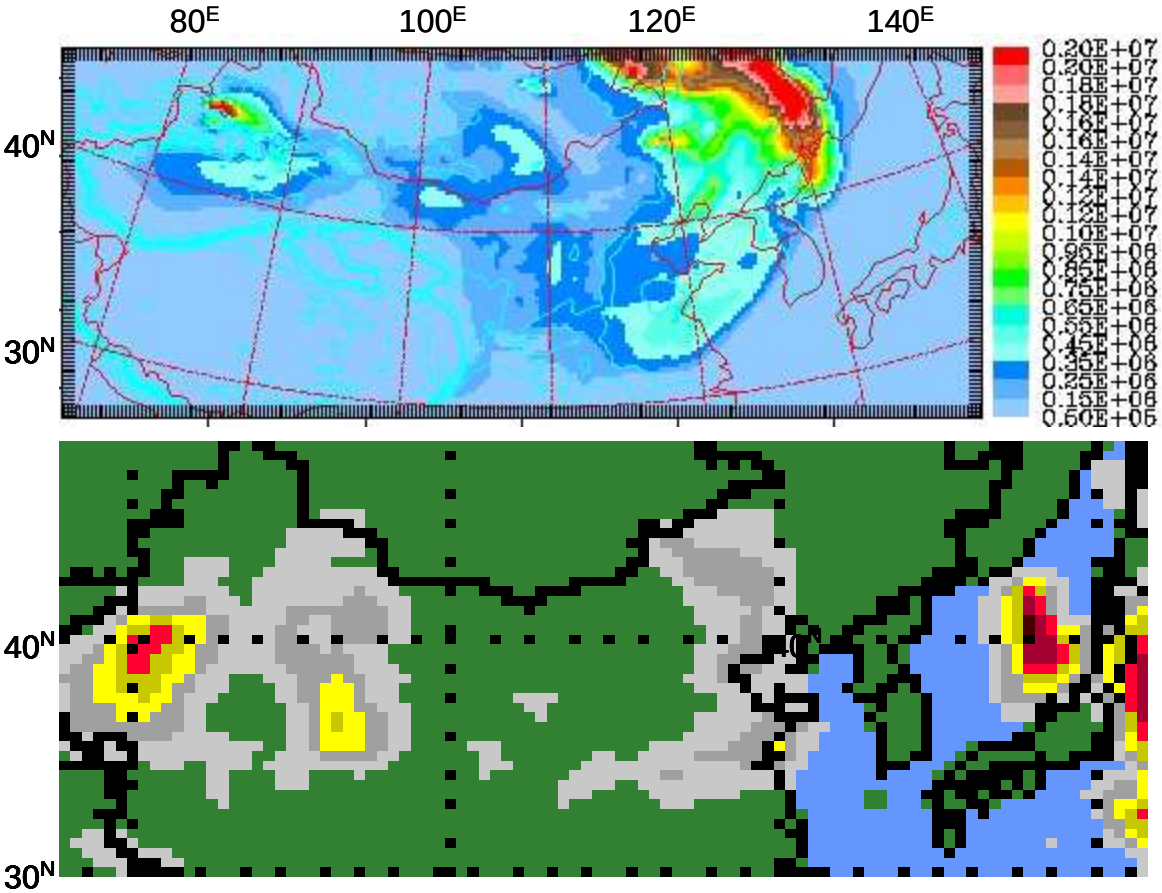


Figure 3.12.e – Idem 3.12.a pour la journée locale du 01 avril 2005 (06 TU). maximum zonal à 06TU : 2,86 g.m^{-2}

En résumé, le cadastre d'émission s'avère adéquat pour restituer les contours qualitatifs des évènements tels que dessinés par les indices d'aérosols TOMS. Semi-quantitativement, les charges colonnes calculées sont en bonne correspondances avec les images TOMS lorsque celles-ci sont établies sur le continent (27, 28 et 29 Avril) alors que les images TOMS relatives au transport de longue distance vers la Corée, le Japon et l'Océan Pacifique (30 Avril et 01 Mai) ne peuvent être expliquées par nos calculs de charges colonnes minérales. Peut-être sous-estimons-nous, les charges colonnes en aérosol minéral, mais il est aussi clair que elles-ci ne pourraient à elles seules justifier les indices TOMS dans les zones anthropisées, d'où la nécessité de tenir compte des autres types d'aérosols (chapitre 4).

3.2.4 – Confrontation des sorties du modèle aux données d'observation in-situ en deux villes en Chine et une ville au Japon appartenant à la zone simulée, du 27 Avril au 02 Mai 2005.

- Description des lieux de mesures in situ

Nous allons à présent nous focaliser sur 3 villes qui sont, de l'Ouest vers l'Est, c'est-à-dire dans le sens des vents dominants: Hohhot, Beijing et Toyama (voir *fig 3.3*). Ces sites, nous le verrons, sont représentatifs de 3 situations distinctes. Nous nous intéressons ici aux analyses des concentrations des aérosols minéraux : concentrations en surface et profils verticaux.

Hohhot (111°7E, 40°8N, 1100 m, 1 500 000 habitants avec la périphérie), se situe en Mongolie intérieure, au Nord Est de la boucle du Fleuve Jaune, à environ 450 km à l'Ouest de Beijing. Cette ville est un lieu privilégié de mesures, car elle apparaît être sous l'influence des vents transportant les poussières issues des déserts de Gobi, de l'Alashan et de Mongolie. Signalons néanmoins que la ville s'appuie au Nord et au Nord Ouest sur une chaîne de moyennes montagnes (alors que les 2 autres directions cardinales sont ouvertes sur des plaines) ce qui signifie qu'un effet d'écran dû à ce relief ne peut être négligé, en particulier devant les transports de poussière les plus proches de la surface. Nous analyserons diverses données physiques issues de mesures à Hohhot comme étant révélatrices de l'état des aérosols proche des sources de poussières minérales, mais il faudra garder à l'esprit que l'agglomération de Hohhot est, en outre, fortement polluée par des émissions anthropiques, en partie en raison des industries lourdes se situant dans la moitié occidentale de la ville: une aciérie, une centrale électrique, une brasserie et des industries chimiques.

Beijing (ou Pékin, 116°E, 39°N, 15 000 000 habitants), en tant que mégapole (on dit aussi «mégalopole») et capitale administrative de la Chine ne peut que se présenter à grands traits si l'on ne veut pas tomber dans un inventaire interminable de ses singularités. Beijing s'incline vers des montagnes d'une altitude moyenne de 1 000 à 1 500 m à l'Ouest, au Nord et au Nord-Est et s'ouvre sur une grande plaine d'une altitude variant entre 20 et 60 m qui descend doucement jusqu'à la Mer Bohai, débouché maritime de l'agglomération pékinoise. Le mont Lingshan est le point culminant de la région de Beijing avec une altitude de 2 303 m. Les hautes collines représentent 62% de la superficie totale de la ville avec 10 400 km² et la plaine, 38% avec 6 400 km². Nous analyserons les données relatives à cette ville comme étant particulièrement représentatives de la rencontre des aérosols qui nous intéressent ici: les minéraux portés par les tempêtes de sable générées dans les déserts continentaux et les polluants anthropiques issus de la ville elle-même et des centres urbains qui l'entourent sur plusieurs centaines de kilomètres.

Enfin, au Japon, Toyama (36°7N, 137°1E, 1 200 000 habitants avec la périphérie), est une ville côtière située au sud d'une baie ouverte sur la mer du Japon au Nord Ouest et bordée par des chaînes de montagne hautes de plus de 2000 m sur son flanc Est et des collines au Sud et à l'Ouest. L'activité industrielle locale tournée vers les biotechnologies ne peut pas être qualifiée de polluante, aussi bien, les mesures qui y sont effectuées donnent des indications de pollutions minérales et anthropiques dont l'origine sera systématiquement continentale pour les premiers, et majoritairement continentale pour les seconds. On pourra de la sorte discuter des transports longues distances de ces différents aérosols, par exemple sur une distance d'environ 2000 km entre Beijing et Toyama.

- Un exemple de l'utilisation des indices de qualité de l'air sur les deux villes de Chine

Nous aurons l'occasion - pour les villes en Chine - d'utiliser, à titre indicatif et sans prétention d'exactitude, les chiffres de qualité de l'air (API : *Air Pollution Index*) fournis par le SEPA, service gouvernemental chargé entre autres d'un suivi quotidien de la qualité de l'air urbain dans 80 villes du pays. Cet indice journalier renseigne sur la teneur en polluant majoritaire. Sur Hohhot et Beijing, durant notre période d'étude, le polluant majoritaire a toujours été désigné sous forme de PM_{10}, ce qui peut inclure des poussières minérales, et jamais sous une des autres formes envisagées par le SEPA: SO_2 ou NOx (cet indice peut, en effet, caractériser un gaz comme un aérosol, suivant la nature du polluant majoritaire du jour).

En reprenant des tableaux de conversion des concentrations moyennes et quotidiennes de PM_{10} en API, valables sur 6 intervalles successifs englobant les concentrations en PM_{10} comprises entre 50 et 600 $\mu g.m^{-3}$, nous avons déduit par régression polynomiale d'ordre 3 une loi continue de conversion des API en PM_{10}, vérifiant $R^2 = 0.9968$, qui s'écrit :

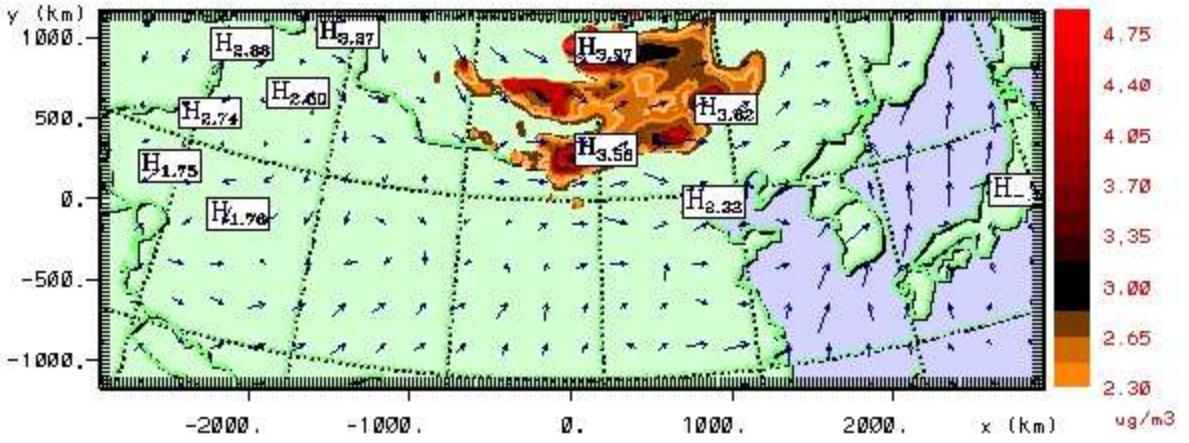
$$PM_{10}\left(\mu g.m^{-3}\right) = 8.10^{-6}(API)^3 - 8{,}7.10^{-3}(API)^2 + 3{,}6706(API) - 121{,}27$$

Certains auteurs [Li et al., 2003; Guo J. et al., 2004; Han et al., 2004], considèrent comme nous-même qu'il s'agit d'un indicateur intéressant des épisodes de poussières minérales, en particulier à Beijing [Zhang et al., 2003b] et s'appuient de façon plus affirmée que nous-même sur les API pour en extrapoler les concentrations de divers types d'aérosols. Comme nous n'avons pas déterminé avec exactitude ce que contenait très exactement le terme "PM_{10}" (en dehors du critère de dimension) pour les auteurs des indices API et comme ces indices ne sont que des moyennes quotidiennes (en temps local) nous ne leur ferons pas dire plus que ce qui nous semble être un ordre de grandeur de la concentration en mélange de particules de diamètres inférieurs à 10 µm, pour autant que celle-ci n'excèdent pas en réalité 600 $\mu g.m^{-3}$ car les API ne sont pas définis au-delà.

- Cartes des simulations des concentrations de surface

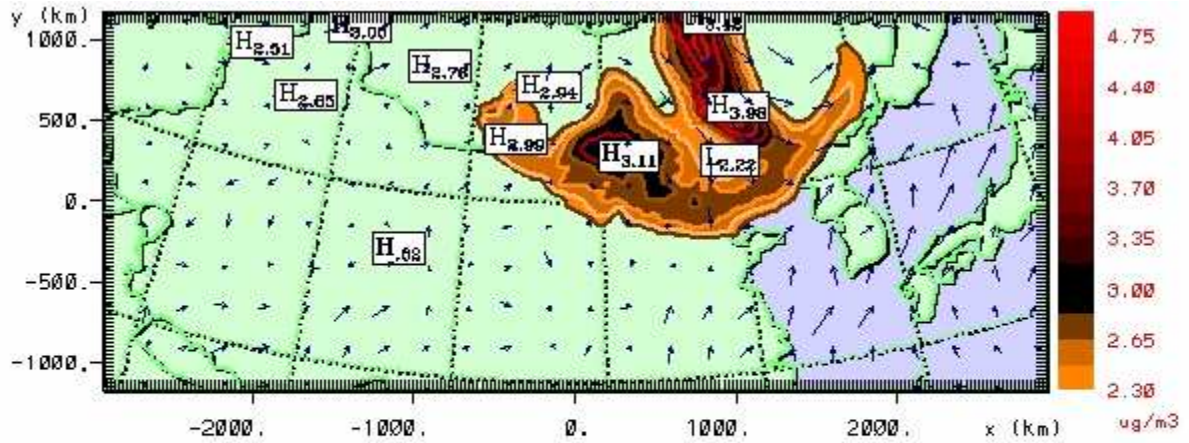
Ce paragraphe traitant en particulier des concentrations en surface, nous commençons par une cartographie chronologique des concentrations en poussières minérales simulées dans la couche de surface (la première couche du modèle correspond à une épaisseur d'environ 20m au-dessus de la surface) du 27 à 00 TU au 02 à 00TU : *figures 3.13.a* à *3.13.f.* On retrouve bien évidemment le transport de poussières d'Ouest en Est déjà discuté au paragraphe précédent en termes de charges colonne. Nous présentons ici les concentrations de surface supérieures ou égales à 200 $\mu g.m^{-3}$. En dehors des concentrations en zones sources désertiques qui peuvent dépasser les 10^4 $\mu g.m^{-3}$, ces concentrations apparaissent être les plus élevées les 27-28 Avril sur Hohhot, les 28-29 sur Beijing tandis qu'il faut attendre le 30 Avril pour que les poussières (en surface) soient calculées en quantités notables en Corée et au Japon.

A titre de comparaison pour les concentrations en zones sources, Mori et al. [2002] avaient pour leur part tenté d'estimer les concentrations en poussières minérales au niveau des sources de l'évènement de la mi-Avril 1998. Ils ont extrapolé les quantités à partir des teneurs en Aluminium des aérosols minéraux, quantités mesurées en 7 lieux étalés sur le trajet des poussières, en Chine, Corée du Sud et Japon. Ils ont obtenus un ordre de grandeur de 9.10^4 $\mu g.m^{-3}$ avec une incertitude de 30 % et sachant que cette estimation ne comptait que l'aérosol apte à parcourir les longues distances (donc excluant les tailles géantes) où il fut possible de mesurer ses traces. Cette valeur correspondait à 820 fois la moyenne des TSP (101 $\mu g.m^{-3}$) observée au Japon pendant l'évènement, 100 fois la concentration calculée à la surface (dépassant 900 $\mu g.m^{-3}$) [Uno et al., 2001], et 90 fois la concentration en aérosol minéral calculée sur la base de la concentration en Al mesurée dans le matériel collecté à Shapuotou (Chine) durant une autre tempête de sable, [Zhang et al., 1993]. Nous obtenons une estimation, incluant, quant à elle, les aérosols susceptibles de sédimenter sur de courtes distances, d'une ordre de grandeur 10 fois inférieur à la valeur de Mori et al.[2002] pour l'évènement de 1998.



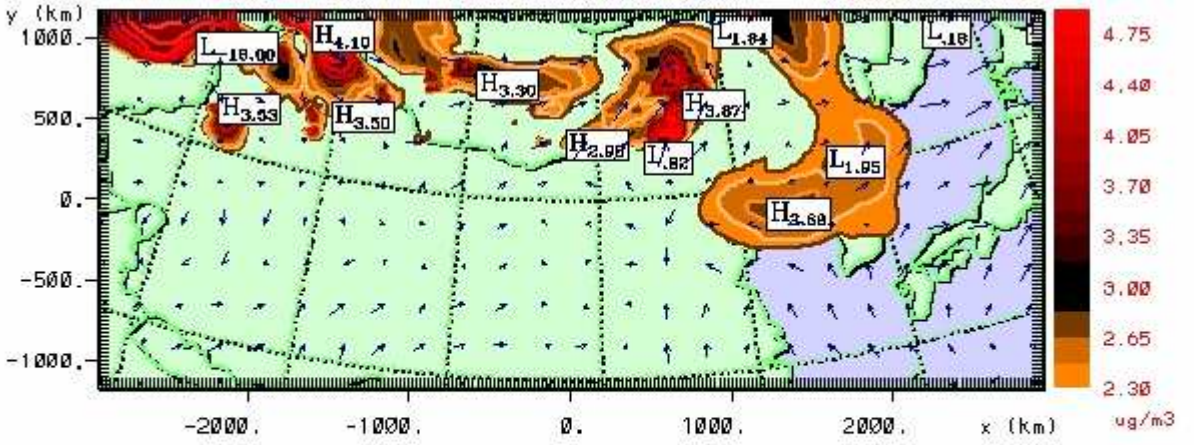
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-27-0600.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	3.970	0.1750	1e 0
vectors ›	2 m/s horiz	0.1299	18.91		

Figure 3.13.a – Concentration volumique en aérosol minéral (échelle log_{10}) et champ des vents produits par RAMS à 06 TU le 27 Avril (14 TL) . maximum zonal : 9330 µg.m^{-3} ; l'isocontour minimal coloré représente une concentration de 200 µg.m^{-3}.



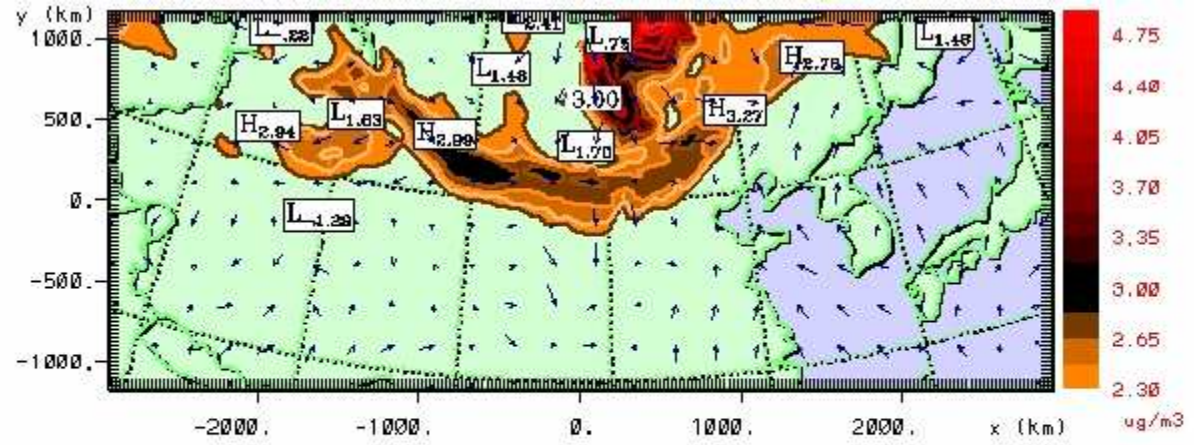
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-28-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	3.988	0.1750	1e 0
vectors ›	2 m/s horiz	0.3801E-01	17.31		

Figure 3.13.b – idem 3.13.a à 00 TU le 28 Avril (08 TL) . maximum zonal : 9680 µg.m^{-3}



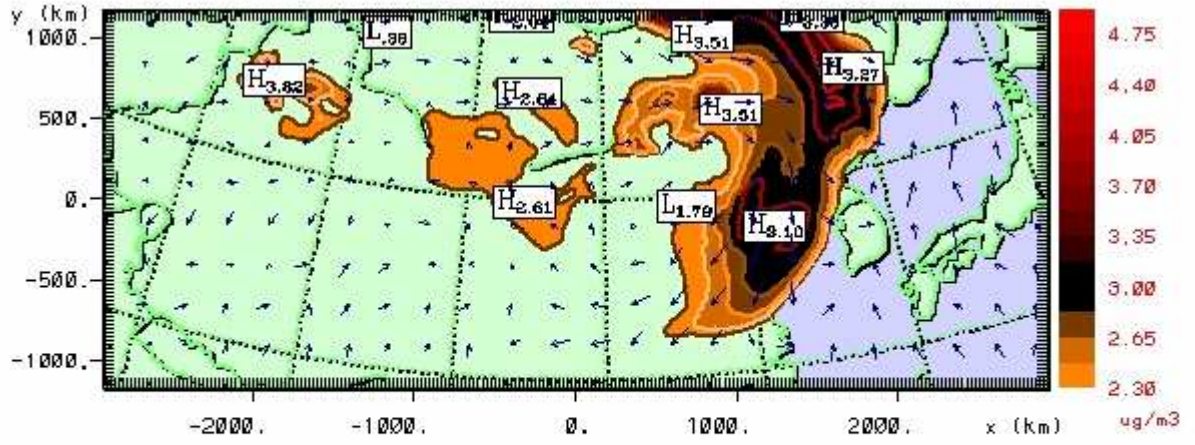
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-29-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	4.106	0.1750	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.5145E-01	16.99		

Figure 3.13.c – idem 3.13.a à 00 TU le 29 Avril (08 TL) . maximum zonal : 12760 µg.m^{-3} ;



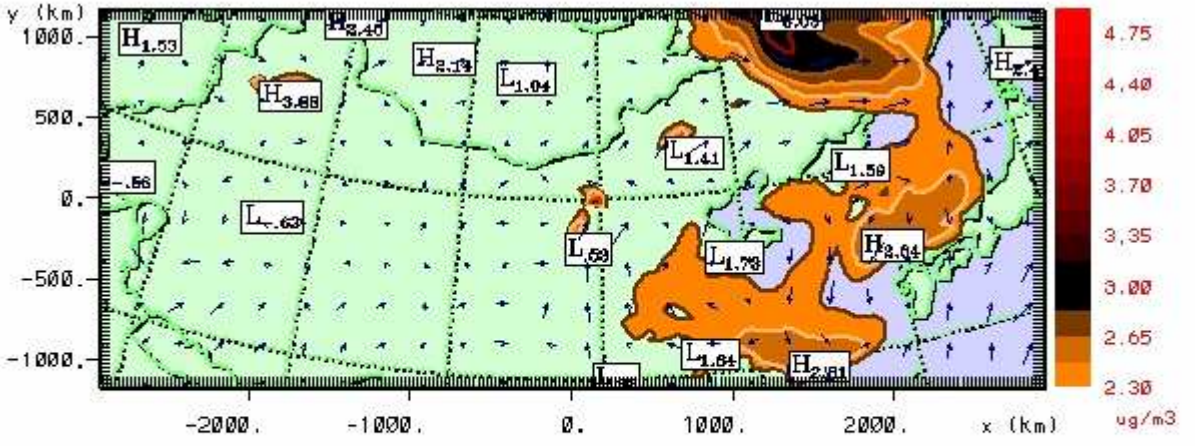
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-30-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	3.875	0.1750	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.1914E-01	16.28		

Figure 3.13.d – idem 3.13.a à 00 TU le 30 Avril (08 TL) . maximum zonal : 7500 µg.m^{-3} ;



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-05-01-0300.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	3.820	0.1750	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.2381E-01	19.30		

Figure 3.13.e – idem 3.13.a à 03 TU le 01 mai (11 TL) . maximum zonal : 6610 µg.m^{-3} ;



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-05-02-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	log10(cmas) (ug/m3)	-16.00	3.382	0.1750	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.1367E-01	17.38		

Figure 3.13.f – idem 3.13.a à 00 TU le 02 mai (08 TL) . maximum zonal : 2410 µg.m^{-3} ;

Ayant décrit le contexte à l'échelle régionale, nous passons maintenant à l'étude des concentrations en surface, ville par ville. Nous analyserons également les profils de concentrations et les charges colonnes, en vue de confronter ces résultats de simulations aux mesures de terrain.

- Résultats des simulations et observations in-situ à Hohhot (Chine)

  - Concentrations volumiques au sol et charge colonne

Les données météorologiques enregistrées toutes les heures à Hohhot et accessibles en ligne sur le site grand public http://www.wunderground.com indiquent que le vent de Sud-Ouest qui soufflait entre 10 et 50 km/h (3 à 14 $m.s^{-1}$ en rafales) sur Hohhot pendant la deuxième partie de la journée du 27 Avril en temps local, s'est orienté plein Nord à 23TL, avec une visibilité de 3 km remontant à 7 km à minuit (http://www.wunderground.com/history/airport/ZBHH/2005/4/27/DailyHistory.html avec le jour a adapter pour les différentes dates, ici 2005/4/27). De minuit à 07TL du matin la visibilité a varié entre 300 et 1000 m avec un vent constamment orienté au Nord et au Nord Ouest et des vents moyens horaires compris entre 10 et 25 km/h (3 à 7 $m.s^{-1}$)

On trouve ici confirmation que la tempête de sable étudiée est arrivée sur Hohhot par le Nord, indication d'origine qu'il faudra associer aux effets des reliefs montagneux du Nord de la ville pour commenter les résultats de simulation.

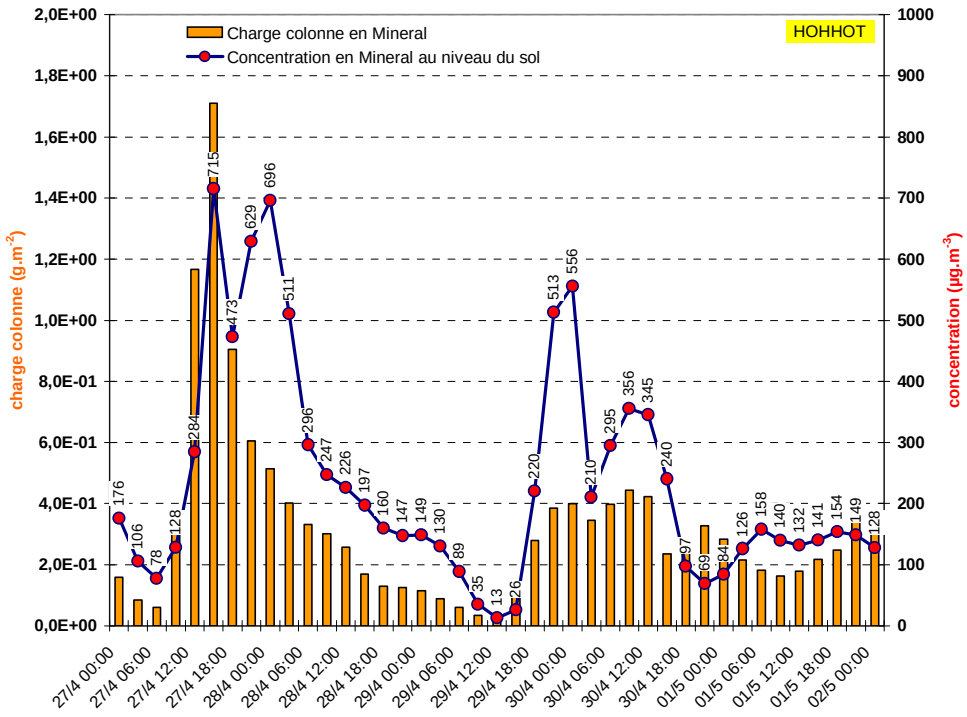


Figure 3.14.a - ligne (pts rouges) : historique des concentrations ($\mu g.m^{-3}$) de surface en aérosols minéraux à Hohhot; barres oranges: historique des charges colonnes ($g.m^{-2}$) calculées à la verticale de Hohhot.

L'historique des concentrations de surface (en heures TU) à Hohhot est représenté sur le graphique de la *figure 3.14.a* où est également tracée sous forme d'histogramme l'évolution de la charge colonne en poussières minérales.

Un fort épisode de tempête est clairement identifié dans la matinée du 28 Avril en temps local (fin du 27 TU). Le profil chronologique des concentrations de surface pour ces journées des 27 et 28 Avril présente un retard de phase de quelques heures par rapport à l'évolution des charges colonne. Cela illustre le fait que le modèle calcule un transport de poussière se produisant de façon différenciée suivant l'altitude (comme nous le verrons plus loin). Les maxima de concentration de surface calculés pour le 30 Avril sont, en revanche, synchronisés avec ceux des charges colonne, ce qui correspond à un front de poussières progressant de façon beaucoup plus proche du sol que l'événement précédent.

Sur la *figure 3.15.a*, nous présentons, ensemble, les historiques des concentrations calculées en surface (et déjà présentées sur la *figure 3.14.a*.), la courbe des mesures in-situ ainsi que les concentrations en PM_{10} que nous avons déduits des indices de pollution de l'air (API).

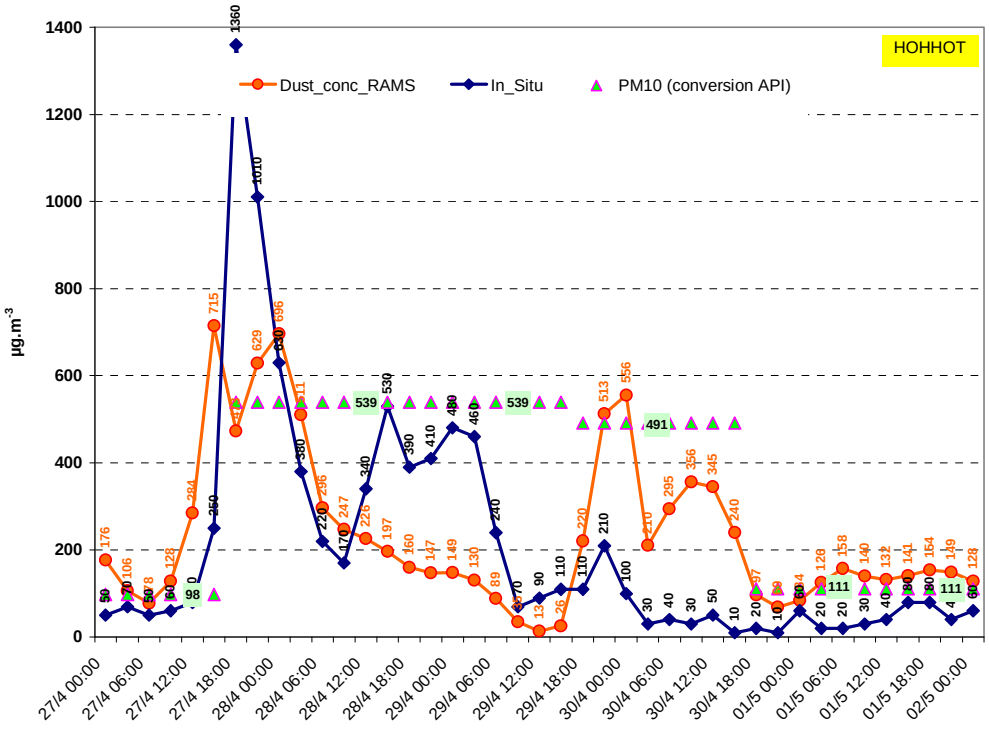


Figure 3.15.a – Hohhot : Ligne orange: historique calculé des concentrations (µg.m^{-3}) de surface en aérosols minéraux. Ligne bleue: historique des concentrations mesurées in-situ Triangles (fond vert) : PM_{10} journalier déduit de l'indice API

On constate que la courbe du modèle se rapproche, dans l'ensemble, des mesures de terrain sans retrouver pour autant des valeurs totalement satisfaisantes. Pour comparer les séries de résultats, qui ne peuvent être parfaitement synchronisées dans le temps, on peut utiliser le coefficient de corrélation ρ défini par

$$\rho_{X,Y} = \frac{\mathrm{Cov}(X,Y)}{\sigma_X \sigma_Y} \qquad \text{où} \qquad \mathrm{Cov}(X,Y) = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(x_i - \langle x_i \rangle\right)\left(y_i - \langle y_i \rangle\right)$$

Le coefficient ρ calculé entre les données in situ et les simulations est de 0.49. La corrélation reste cependant significative. A titre d'information, la corrélation entre les mesures in situ et les PM_{10} est de 0.48 tandis qu'on obtient 0.29 entre la simulation RAMS et les estimations des PM_{10}, mais attention, les PM_{10} issues des API sont journaliers, alors que les produits de simulations sont beaucoup plus fréquents.

Les résultats de simulation sous-estiment les observations pour l'évènement principal du 28 Avril, qui s'est prolongé jusqu'au 29 d'après les mesures de terrain. Les PM_{10} des 28 et 29 Avril approchent les valeurs maximales possibles de la gamme des indices API. Ces PM_{10} doivent donc être considérés comme des estimations des limites basses des concentrations réelles moyennes pour ces deux journées. Pour le second transport de poussières, le 30 Avril, nous constatons, à l'inverse des journées précédentes, une surestimation des quantités calculées par rapport aux mesures in situ mais une très bonne correspondance avec l'estimation du PM_{10}.

Enfin, l'ensemble des 3 indicateurs convergent les uns vers les autres au début du moi de Mai, indiquant, avec des valeurs proches de 100 $\mu g.m^{-3}$ une diminution sensible des transports de particules minérales en surface.

En résumé, les calculs de concentrations à Hohhot ne sont certainement pas parfaits si on les compare aux mesures de concentrations in situ, mais ils transcrivent assez fidèlement la chronologie et l'évolution globale de ces enregistrements. Il n'est donc pas aberrant d'examiner maintenant comment le modèle simule le profil vertical des transports de poussière sur Hohhot.

Précisons que les charges colonne que nous avons calculées seront employées pour estimer les épaisseurs optiques mesurées par les photomètres. Ces estimations seront faites au chapitre 4, où nous prendrons en compte simultanément les contributions des aérosols minéraux et anthropiques.

- Profils verticaux des concentrations volumiques en aérosol minéral à Hohhot. Analyse des données LIDAR.

La *figure 3.16.a*. montre les profils verticaux de concentrations en poussières minérales, toutes les 6 heures, sur les 6000 premiers mètres (les l6 premiers niveaux RAMS) au dessus de Hohhot. Ce niveau de 6000m est supérieur à l'altitude de transport généralement observée dans la zone étudiée, et de plus correspond à la limite supérieure de validité de la méthode de restitution des données LIDAR, qui opère sur 200 couches de 30 m d'épaisseur [Shimizu et al., 2004].

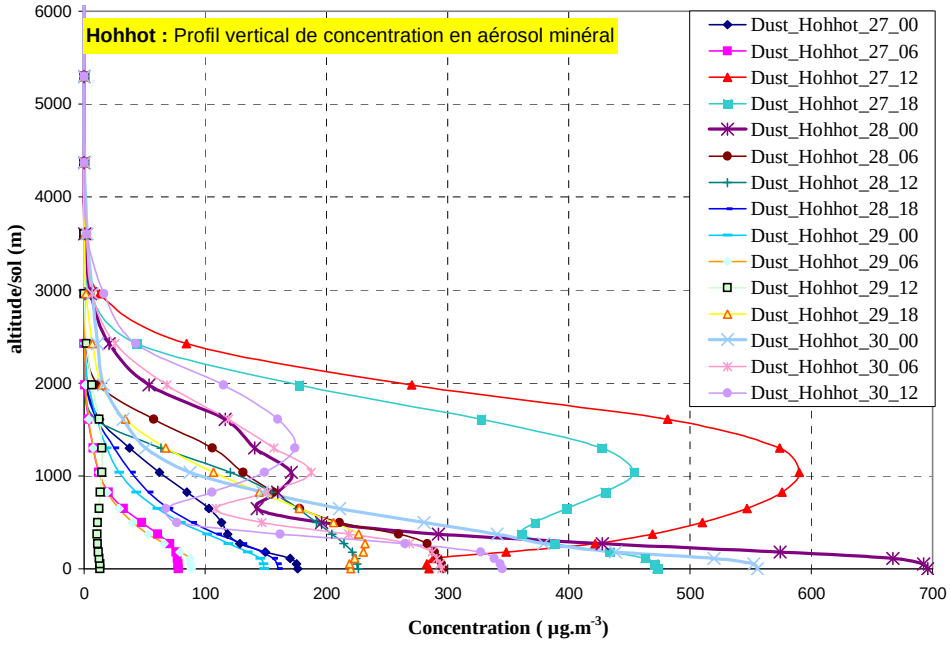


Figure 3.16.a – Hohhot : Profils verticaux chronologiques (toutes les 6 heures TU) des concentrations en aérosols minéraux entre 0 et 6000 m.

Le profil du front de poussières calculé le 27 à 12 TU localise une concentration maximale d'environ 600 µg.m^{-3} autour de 1000 m au dessus du sol, ce qui corrobore l'intuition précédente disant que cette tempête de sable avait du survoler Hohhot à une certaine altitude avant même que les poussières transportées au ras du sol n'arrivassent sur la ville. La concentration au sol simulée est deux fois moins importante qu'à 1000 m. 6 heures plus tard, le profil montre une inversion de tendance et celle-ci est

totalement affirmée le 28 à 00 TU où les concentrations décroissent de façon quasi-monotones du sol (près de 700 µg.m^{-3}) vers les hauteurs (170 µg.m^{-3} à 1000 m).

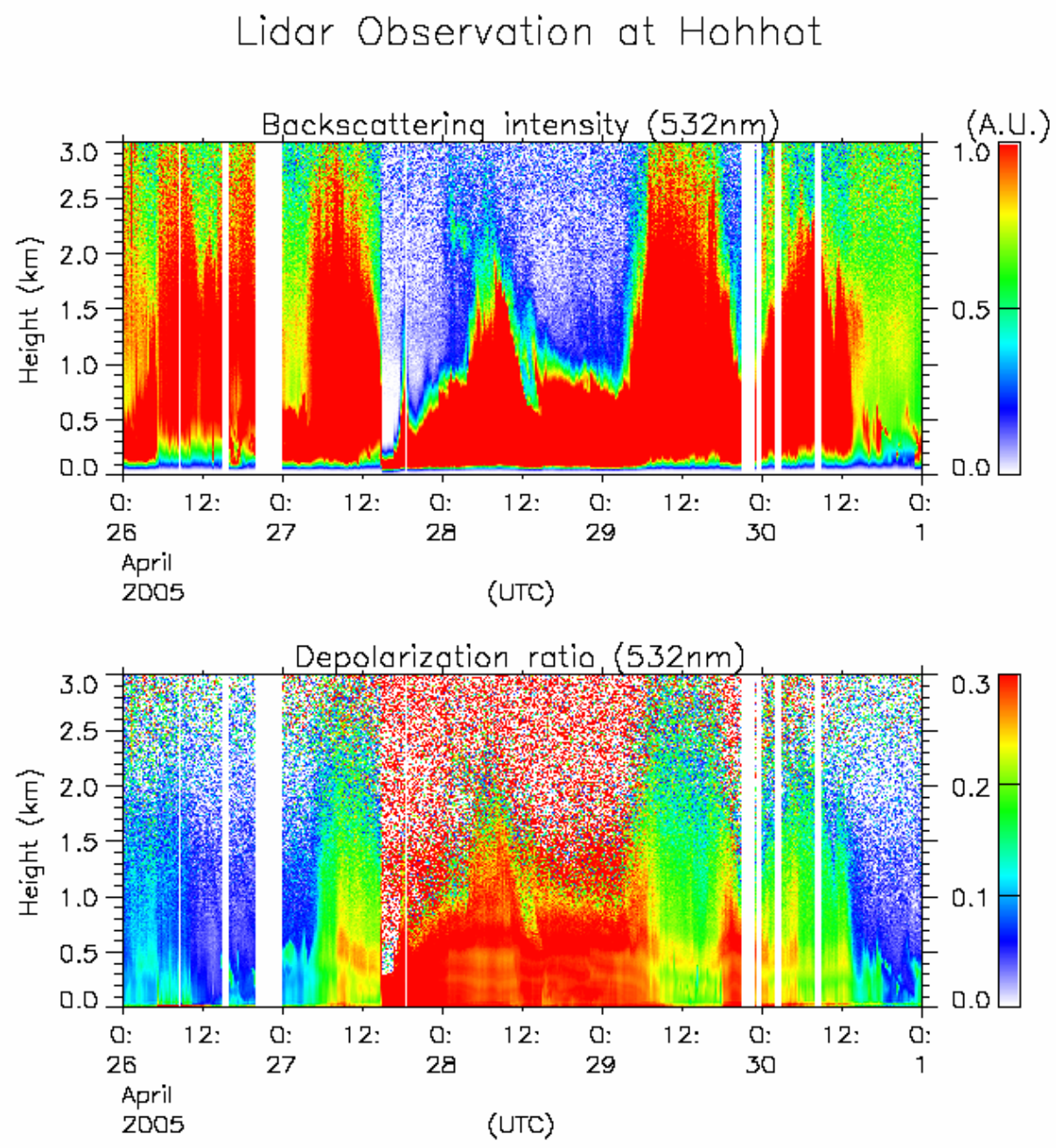


Figure 3.17 – figures d'intensité de rétrodiffusion et de taux de dépolarisation LIDAR sur Hohhot, du 26 au 30 avril 2005.

Le 30 Avril à 00 TU (08 TL) le second événement de poussières minérales présente un transport extrêmement proche du sol dans un premier temps, puis se déformant pour être plus

dense entre 1000m et 2000m, 12 heures plus tard. Comme cet événement provient du Nord d'Hohhot, on peut se demander si les effets de relief ne participent pas une fois de plus (en plus de distances de transport et de dynamiques de vents également différentes) à de brusques variations dans les allures des fronts de poussières. Cette situation du 30 Avril est moins probante que celle du 28. Nous surestimons certainement la réalité des particules transportées jusqu'au sol à Hohhot car nos calculs sont supérieurs aux mesures in-situ et les conditions météorologiques sont celles d'un temps clair avec des visibilités élevées. Nous pouvons cependant supposer qu'un transport de poussières à sans doute eu lieu malgré tout, en altitude, en analysant les mesures LIDAR. *La figure 3.17* présente -les intensités de rétrodiffusion et de dépolarisation, pour les 3000 m premiers mètres.

En terme de rétrodiffusion, jusqu'au 27 Avril vers 06 TU, l'atmosphère apparaît composé d'aérosols non dépolarisants, c'est-à-dire de polluants anthropiques. Le premier évènement du 27 présente une extension verticale supérieure à 2000 m, comme nous l'avons calculé (avec quelques heures de retard). On distingue une période de transition de quelques heures, avec un front d'aérosols "mixtes", d'extension verticale qui dépasse les 2500 m. Peu après 12 TU, ce même 27 Avril, les sondages du LIDAR montrent une brutale augmentation du signal rétrodiffusé, ce qui indique un nuage d'aérosols à très basse altitude, tandis que le taux de dépolarisation augmente brusquement à plus de 30% entre le sol et 1000 m, suggérant fortement qu'il s'agit d'aérosols minéraux (dépolarisants) apportés par la tempête de sable au moment de sa subsidence. Dans la journée du 29, nous constatons une diminution, tant du signal de rétrodiffusion que de l'intensité de dépolarisation. Le 30 Avril, autour de 00 TU, l'augmentation du taux de dépolarisation plaide en faveur d'une nouvelle arrivée de particules minérales, évènement que nous avons également calculé. Il nous semble difficile d'interpréter la forme de ce second front de poussières, sinon qu'il possède une extension verticale dépassant à nouveau les 2000 m de hauteur, ce qui corrobore nos calculs de profils autour du 30 Avril à 12 TU (*fig. 3.16.a*) et justifie en partie les résultats de nos simulations, pour ce qui est des altitudes élevées.

Sur l'allure générale de l'évènement de poussière simulé, nous concluons que celle-ci, par exemple en terme de charges colonnes intégrées en poussières minérales (*figure 3.14.a*) est similaire à l'allure générale de l'évolution de la rétrodiffusion LIDAR globale.

- Résultats des simulations et observations in-situ à Beijing (Chine)

  - Concentrations volumiques au sol et charge colonne

D'après la chronologie des images TOMS et celle de nos simulations de concentrations volumiques au sol (*figures 3.13*), deux évènements de tempêtes de sable ont concerné Beijing entre le 27 Avril et le 02 Mai 2005. Le premier évènement, daté les 27 et 28 Avril, est commun avec l'intense transport de poussière constaté sur Hohhot aux mêmes dates. Le second épisode a concerné plutôt Beijing que Hohhot.

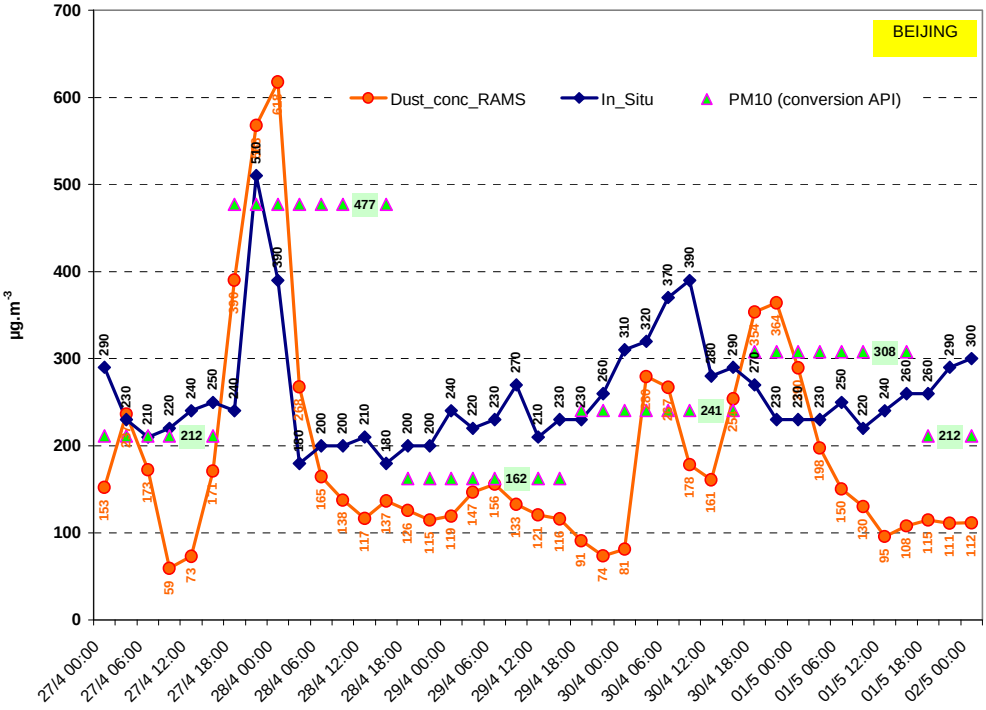


Figure 3.15.b – Beijing : idem 3.15.a (Noter la différence d'échelle verticale)

La *figure 3.15.b* présente ensemble les historiques des concentrations de surface simulés et mesurés, ainsi que les estimations des moyennes quotidiennes des concentrations en PM_{10} déduites des API. Pour le premier épisode de poussières, la mesure in situ à 21 TU le 27 (soit environ 05 TL le 28 au matin) est de 510 $\mu g.m^{-3}$ quand nous calculons à la même période des concentrations maximales au sol variant de 568 à 618 $\mu g.m^{-3}$. La teneur en PM_{10} moyen de la journée du 28 est estimée à 477 $\mu g.m^{-3}$. La durée de l'épisode est d'environ 9-12 heures d'après nos calculs, ce qui encadre correctement le pic des mesures in situ.

Après cet épisode de poussière et jusqu'au 30 Avril, Beijing est épargnée par les transports d'aérosols minéraux majeurs, mais n'en demeure pas moins soumise à un bruit de fond de pollution (pour preuve les mesures in situ souvent supérieures à 200 $\mu g.m^{-3}$ et des PM_{10} calculés le 29 Avril à 162 $\mu g.m^{-3}$). Nos résultats ont tendance à minorer ces mesures (nos simulations ne concernent ici que la composante désertique) mais restent du bon ordre de grandeur.

Le second épisode de poussières est également pris en compte par nos calculs, pour les 30 Avril et 01 mai. Les calculs et les mesures des concentrations tendent bien vers les mêmes ordres de grandeurs de concentrations de poussières (200-400 $\mu g.m^{-3}$) mais avec des déphasages temporels.

Pour l'ensemble des résultats, le coefficient de corrélation entre les résultats de concentration de surface RAMS et les mesures in-situ est de 0.56 .

Les charges colonne en poussières minérales sont visibles sur la *figure 3.14.b* où est également superposée la concentration simulée en surface. La concordance de phase des deux courbes, concentrations au sol et charge colonne, illustre le fait que le passage des poussières sur Pékin était organisé en un panache relativement homogène avec l'altitude (*voir figure 3.16b*).

En comparant les valeurs des charges colonne de Beijing (*3.14.b*) et de Hohhot (*3.14.a*), comprises, durant les deux épisodes de transports les plus notables, entre 0.4 et 1.7 $g.m^{-2}$, on constate que des valeurs similaires sont déterminées aux mêmes instants, que ce soit à proximité des zones sources (Hohhot) ou dans une zone plus éloignée de celles-ci (Beijing). Le coefficient de corrélation entre ces deux séries de résultats est de 0.46 . Trois explications peuvent être avancées: (i) Les poussières qui ont survolé Hohhot ont été peu rabattues au sol durant leur transport jusqu'à Beijing, ce qui pourrait se justifier par l'absence de précipitations calculées, situation conforme aux données météorologiques enregistrées. (ii) Les dépôts éventuels de poussières ont été compensés par de nouvelles injections dans l'air, injections issues des zones sources localisées entre les deux villes, mais, sur notre cadastre, ces points source ne représentent qu'une fraction minime (3 ou 4 points de grille tout au plus). (iii) Il s'agirait d'une coïncidence… mais cette dernière "hypothèse" semble d'autant moins probable que les cartes des champs horizontaux (*fig. 3.13*) de poussière montrent, avec les photographies MODIS (*fig. 3.2*), la simultanéité des faits à Beijing et Hohhot.

Nous conclurons de cette correspondance entre les valeurs des charges colonnes que la ville de Beijing, pour ce qui concerne cette étude, fut soumise aux mêmes

tempêtes de sable que celles survenues à Hohhot, chaque ville ayant bien sûr ses propres spécificités de détails.

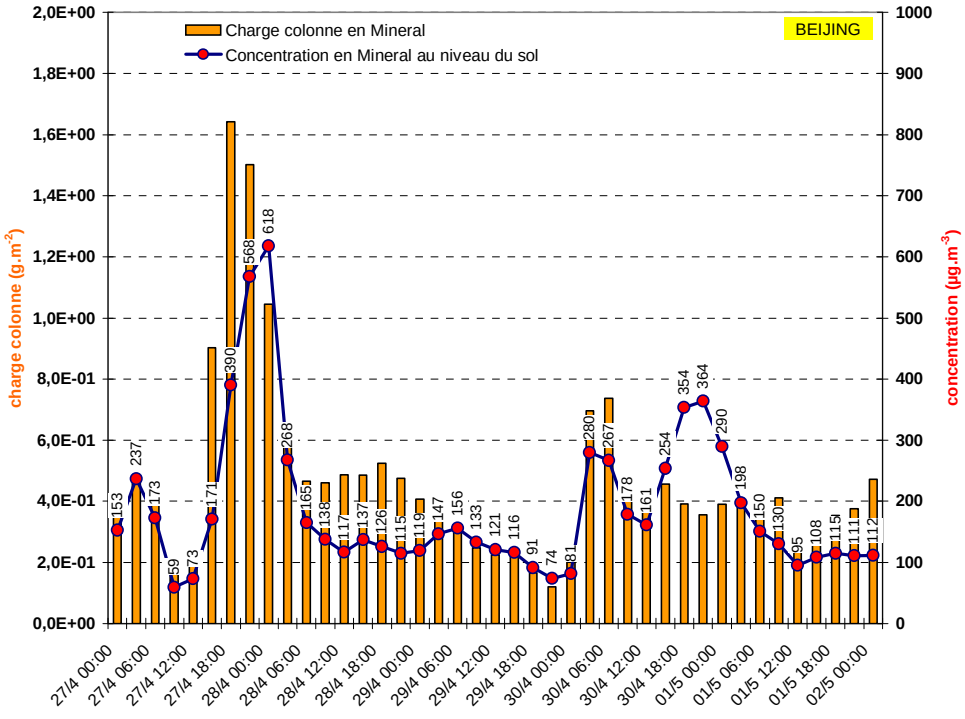


Figure 3.14.b – Beijing : idem 3.14.a (avec échelles spécifiques)

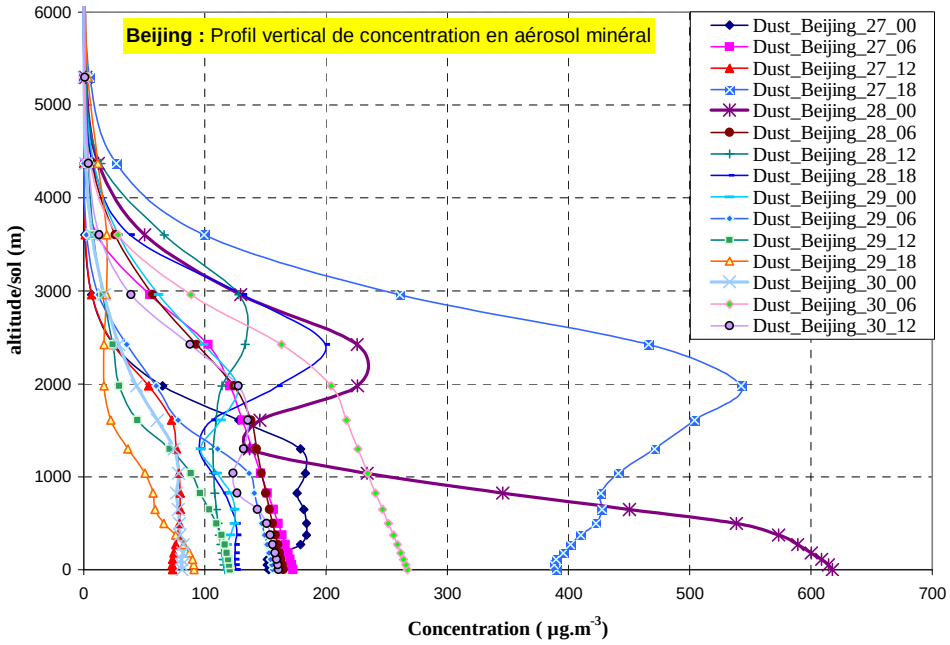


Figure 3.16.b – Beijing : idem 3.16.a (avec échelles spécifiques)

- Profils verticaux des concentrations volumiques en aérosol minéral à Beijing. Analyse des données LIDAR.

D'après les courbes de la *figure 3.16.b*, l'approche des poussières, le 27 à 00 et 06 TU, s'effectuerait selon un profil très homogène verticalement, la concentration variant peu depuis le sol jusqu'à environ 2500 m de la surface (de 180 $\mu g.m^{-3}$ à une centaine de $\mu g.m^{-3}$). Il s'agit cependant d'un front avant-coureur du phénomène le plus intense qui survient 12 heures plus tard environ, après une transition d'air moins polluée. Des profils plus complexes et présentant des valeurs très élevées en altitudes (près de 550 $\mu g.m^{-3}$ à 2000 m le 27 à 18 TU) apparaissent à la fin du 27 Avril et au début du 28 en journées locales. Initialement en "nez de requin" le 27 à 18 TU, le profil des poussières évolue pour montrer un feuilletage en deux couches d'aérosols: une première au niveau sol, qui donne le maximum de la courbe simulée en 3.15.b, soit 620 $\mu g.m^{-3}$, une seconde entre 2000 et 2500 m au-dessus de sol, où les concentrations de poussières dépassent les 200 $\mu g.m^{-3}$, le 28 à 00 TU.

L'épisode du 30 Avril se rapproche, en terme de profil vertical, de ce qui était simulé au tout début du 27, c'est-à-dire, un front vertical assez plat, où l'on calcule des charges supérieures à 200 $\mu g.m^{-3}$ sur les 2000 premiers mètres d'altitude au sol.

Nous présentons sur la *figure 3.18* les traitements de rétrodiffusion et de dépolarisation LIDAR effectués par Shimizu pour Beijing à la fin Avril 2005. D'autre part, le réseau MPLNET (http://mplnet.gsfc.nasa.gov/), réseau international de mesures coordonnée par la NASA, fait aussi fonctionner un lidar à Beijing, à proximité du photomètre AERONET de Xiang He. Nous avons donc joint sur *la figure 3.19* les images de rétrodiffusions (normalisées) déduites de ce LIDAR (523 nm) dont les résolutions sont de 75 m en visée verticale jusqu'à 16000 m, pour des mesures effectuées toutes les minutes.

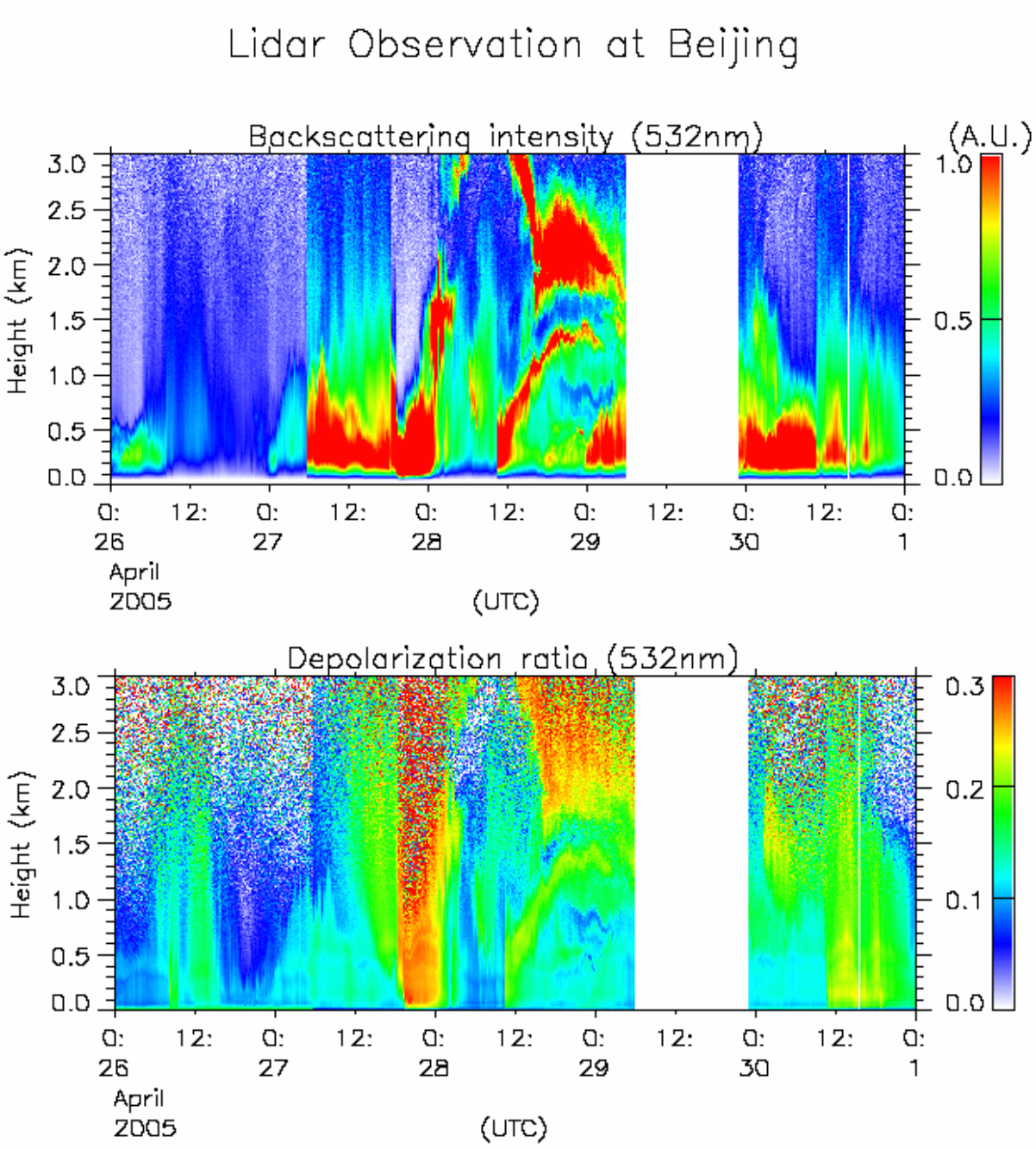
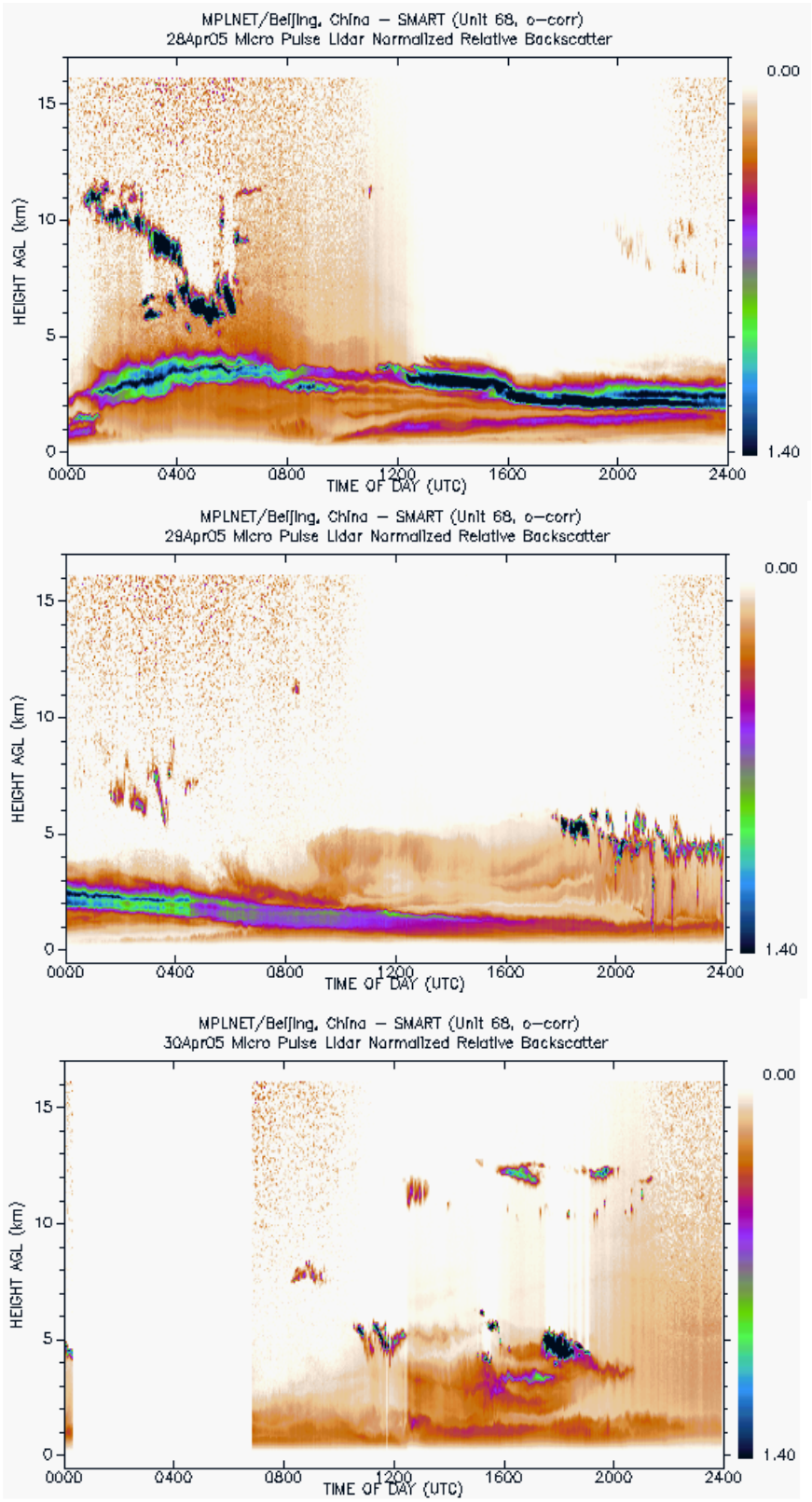


Figure 3.18 – figures d'intensité de rétrodiffusion et de taux de dépolarisation LIDAR sur Beijing, du 26 au 30 Avril 2005.



Figures 3.19 – figures d'intensité de rétrodiffusion des LIDAR MPLNET sur Beijing, du haut en bas : 28, 29 et 30 Avril 2005.

Comparons ces diverses données LIDAR avec nos simulations de profils de poussières.

Nous y trouvons la confirmation d'une distribution verticale relativement homogène entre la surface et 1500 pour l'arrivée du 27 en milieu de journée. Le taux de dépolarisation traduit la signature d'un mélange d'aérosols sphériques et non sphériques. A partir du 27 vers 18 TU, donc dans la nuit du 28 au matin, l'intensité de rétrodiffusion croit soudainement, montrant l'arrivée du nuage de poussières, et ce d'abord à proximité de la surface (élévation maximale comprise entre 500 et 1000 m) comme nous l'avons calculé pour le 28 à 00 TU. Dans la journée, la stratification et les mélanges des formes d'aérosols semblent se répartir autour de deux altitudes: 1500 m et 3000 m pour les analyses du lidar MPL, 0-1000 m et 2000-3000 m pour les rétrodiffusions globales du lidar NIES. Le 30 Avril, entre 0 et 12 TU, les données du lidar MPL manquent, mais d'après le lidar NIES ce second épisode apparaît localisé à moins de 1500 m du sol, quand nous obtenons un profil homogène sous 2000 m d'altitude. Les Lidars montrent que ce dernier épisode porte une charge en aérosols minéraux qui est moindre que celle portée par l'événement du 28.

Pour conclure ce paragraphe consacré aux résultats de modélisation des transports de poussières minérales sur Beijing, nous estimons que ceux-ci représentent convenablement les aspects qualitatifs et même quantitatifs de l'évènement qui s'est réellement produit.

- Résultats de simulations et observations in-situ à Toyama (Japon)

Le transport de particules désertiques vers Toyama, ville côtière au Centre-Ouest du Japon, est étudié comme un exemple possible de l'évolution sur une longue distance d'un panache d'aérosols continentaux. Dans cette partie, nous tentons une première approche concernant uniquement les particules minérales. Comme nous l'avons déjà signalé, les aérosols de pollution, éventuellement transportés depuis la Chine et la Corée jusqu'au Japon, seront pris en compte dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

Les photographies MODIS des 29, 30 Avril et 01 Mai sont présentées sur *les figures 3.20,* où les villes de Toyama et Beijing sont indiquées.

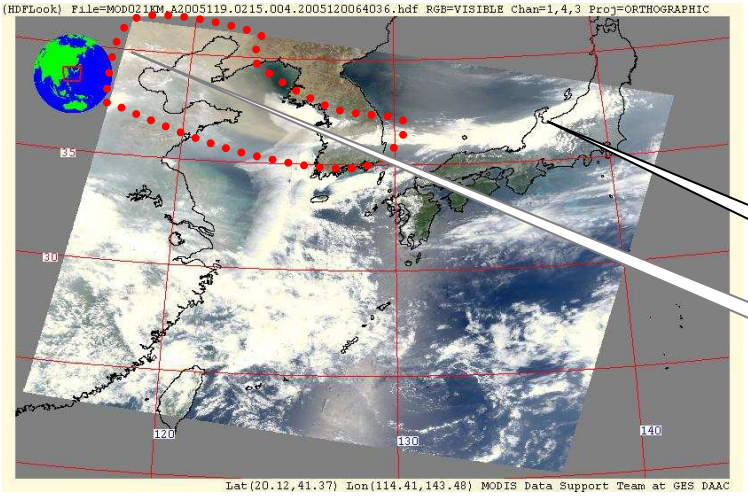


figure 3.20.a - photographie MODIS le 29 Avril 2005 pointillés rouges : localisations approximatives des poussières minérales

Toyama

Beijing

Toyama

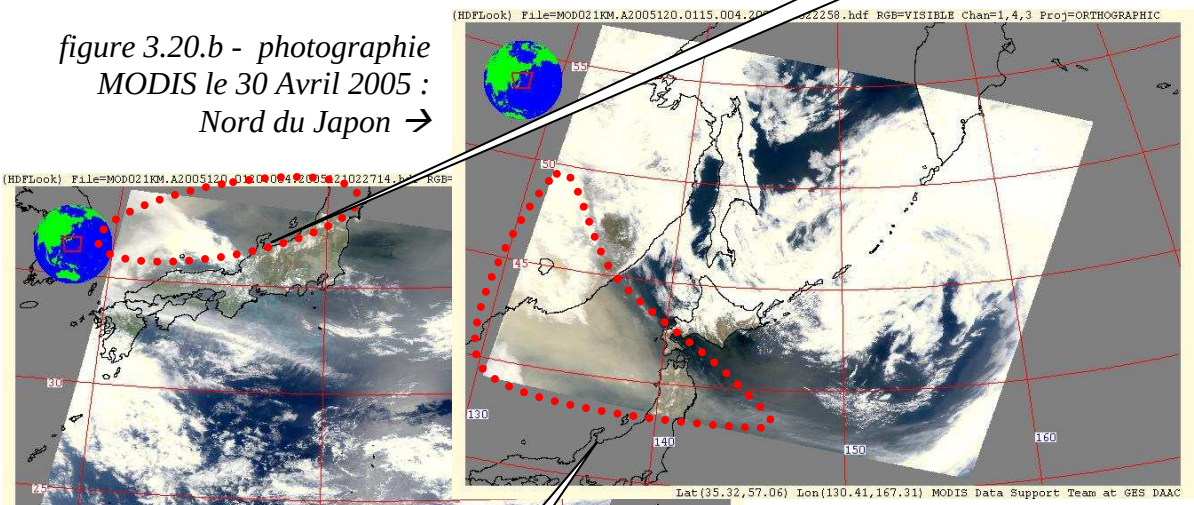


figure 3.20.b - photographie MODIS le 30 Avril 2005 : Nord du Japon →

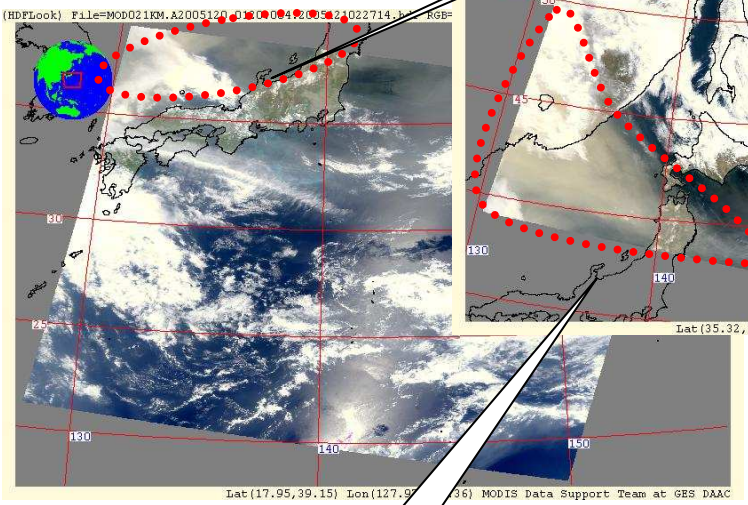
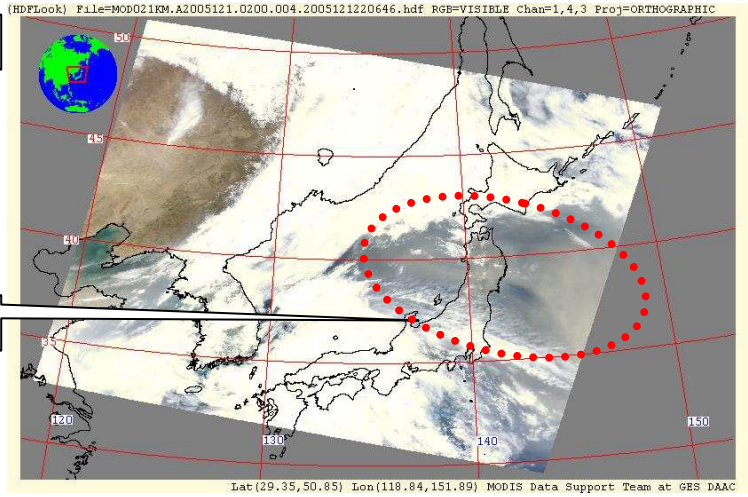


figure 3.20.b - photographie MODIS le 30 Avril 2005 : ← Sud du Japon

Toyama



Toyama

Figure 3.20.c - photographie MODIS le 01 Mai 2005

Ces photos localisent les nuages de poussière les plus épais sur la Mer Bohai et la Corée du Sud le 29 Avril. Les jours suivants, les poussières sont dispersés du centre au nord du Japon, sous un couvert nuageux assez important, ce qui ne facilite pas l'observation… Les nuages devaient sans doute se situer à des altitudes supérieures à celles des panaches de poussières et être, de plus, très peu précipitants puisque le nuage d'aérosols semble (du moins à l'observation) avoir été peu affecté par la proximité de ces nuages. L'existence ou non de précipitations est peu claire car d'un côté il ne semble pas qu'il y ait eu des pluies enregistrées à Toyama durant toute la période simulée mais d'une autre côté, le professeur Aoki (communication personnelle), de l'université de Toyama, nous a fait part de son hypothèse qu'il ait pu pleuvoir les 28 et 29 Avril, car son Lidar automatisé (réseau SKYNET) n'a fourni aucune donnée pour ces deux journées.

Nous distinguons deux épisodes sur le continent, à la fois par nos analyses des observations MODIS (*figures 3.20*) et par nos simulations RAMS. Les tempêtes de sable initiées les 27-28 Avril semblent avoir convergé, au moins pour partie, avec les panaches de particules émises à partir du 30 Avril 2005. Par contre, il nous paraît difficile de donner une origine certaine et parfaitement localisée à l'épisode de poussière qui a touché la Corée le 29 Avril puis le Japon les 30 Avril et 01 mai. Les zones numérotées 1 et 2 (*figures 3.11.c*) sont concernées par les flux d'émission qui ont initié ces mouvements de poussières. La progression des panaches en surface (*figures 3.13.c* à *3.13.f*) militent pour des origines dans les déserts de Gobi et excluent une source plus occidentale, comme le désert du Taklamakan. Une détermination plus rigoureuse des origines géographiques des particules nécessiterait, par exemple, une analyse minéralogique détaillée de particules recueillies sur filtres ou dans les neiges des montagnes qui dominent Toyama, comme l'ont fait Osada et al., [2004], des printemps 1997 à 2002, pour établir des moyennes de dépôts cumulés de poussières à ces altitudes.

- Concentrations volumiques au sol.

Sur la *figure 3.15.c* on constate que les concentrations de PM_{10} mesurées en surface à Toyama - prises aux heures TU correspondant aux sorties des résultats de simulation - sont au maximum comprises entre 10 et 20 $\mu g.m^{-3}$, atteignant 24 $\mu g.m^{-3}$ le 30 Avril à 21 TU. D'aussi faibles concentrations ont de quoi surprendre au vu des

images MODIS. Nous simulons des concentrations de surface bien supérieures à ces mesures de terrain. Pour tout dire, il n'y a pas de corrélation entre nos calculs et les mesures in situ extraites toutes les 3 heures.

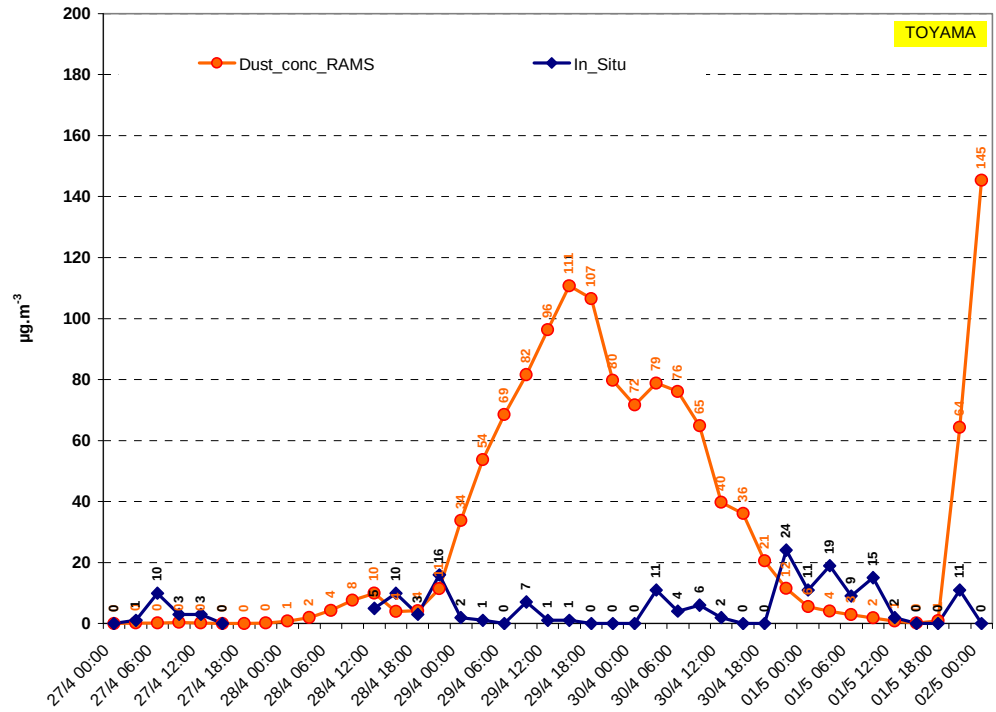
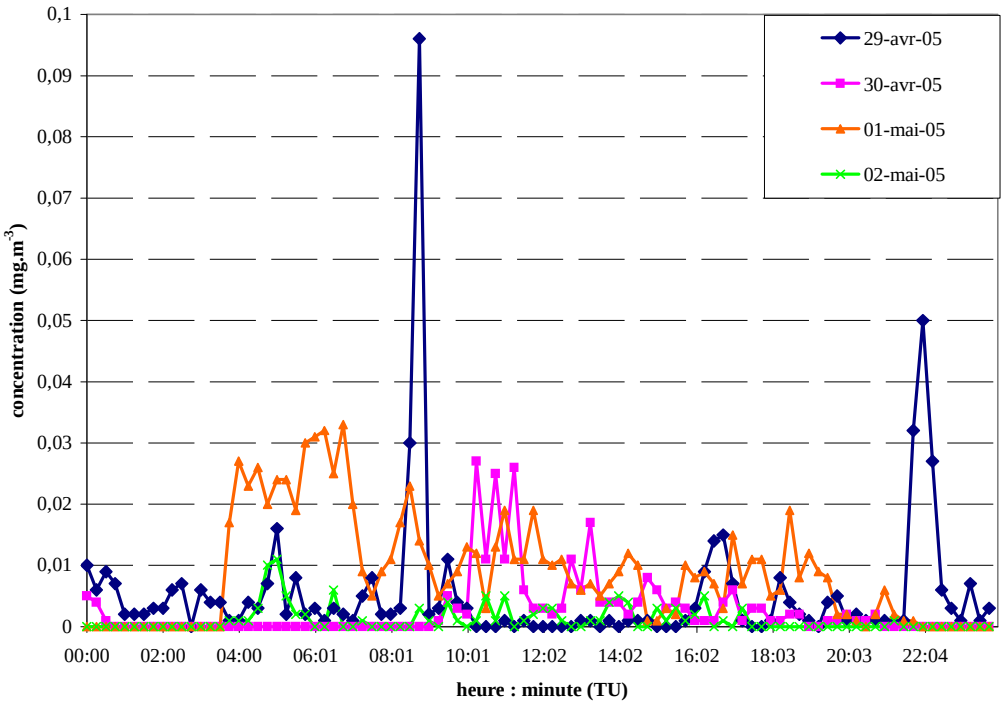


Figure 3.15.c – Toyama : idem 3.15.a (Noter la différence d'échelle verticale)

Cette absence de corrélation nous a amenés, contrairement à la méthode employée pour les études de Hohhot et de Beijing, à devoir comparer nos résultats à la liste chronologique complète des concentrations mesurées sur place, et ce pour les journées du 29 Avril au 02 mai. Rappelons que nous n'avons alors considéré des valeurs qu'avec une fréquence assez basse (toutes les 3 heures), ce qui peut induire un sous-échantillonnage. On a tracé sur la *figure 3.21.a* la série complète des mesures de ces densités d'aérosol, effectuées toutes les 15 minutes. La comparaison avec les résultats de simulation en 3.15.c nous amène à faire certains constats auxquels nous tentons d'apporter des hypothèses explicatives.



Figures 3.21 –Concentrations jour par jour en aérosol, mesurées en surface à Toyama toutes les 15 minutes, les 29 et 30 Avril, ainsi que les 01 et 02 Mai 2005.

Constats : (i) La simulation surestime les concentrations au sol à Toyama et calcule un apport continu de matière durant 48 heures, avec un maximum de plus de 96 µg.m^{-3} le 29 Avril autour de 12-18 h TU, ce qui n'est pas observé dans les mesures au sol. (ii) Le brusque ressaut de concentration calculé vers 00 TU le 02 Mai est franchement sans rapport avec les mesures au sol autour de cette date. (iii) La chronologie des mesures in situ montre un premier « pic de Dirac » à près de 96 µg.m^{-3} le 29 Avril à 08:45 TU et un second 13 heures plus tard, à 50 µg.m^{-3} …

Hypothèses : Des concentrations de poussières de l'ordre de quelques dizaines de µgm^{-3} ne sont pas irréalistes, puisque des pics de PM_{10} (certes brefs) sont mesurés à ces valeurs. Par ailleurs, nous touchons peut-être là aux « limites de l'exercice »: ces valeurs modélisées sont, objectivement, très faibles par rapport aux maxima calculés en zone source. De petites imprécisions sur la dynamique (vents, stabilité verticale etc) peuvent fortement influer sur les valeurs des concentrations. On peut spéculer que la dynamique des vents locaux, due à la spécificité géographique propre à Toyama, (rassemblant des effets de brises marines et orographiques sur un domaine géographique limité), soit l'explication principale des écarts entre les mesures et les simulations.

Nous devons, dans cet esprit, analyser plus avant les répartitions en altitude des aérosols pour tenter de discerner des possibilités de mouvements verticaux de ceux-ci.

- Profils des concentrations volumiques en aérosol minéral à Toyama. Charges colonne et analyse des données LIDAR.

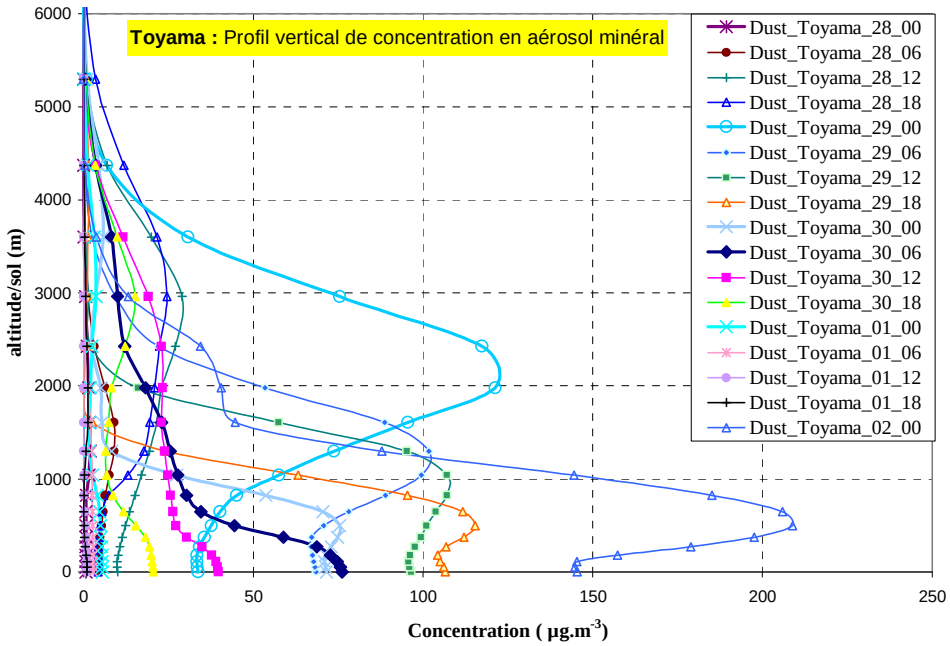


Figure 3.16.c – Toyama : idem 3.16.a (avec échelle spécifique)

La *figure 3.16.c* présente les profils verticaux des concentrations d'aérosols minéraux calculées à la verticale de Toyama. Nous venons de constater que ces profils, en surface, surestimaient largement les valeurs instantanées mesurées au sol, mais nous pensons que certains pics de concentrations aux alentours de 50-100 $\mu g.m^{-3}$ pourraient être la manifestation de subsidences brutales. Lorsque nous simulons des concentrations au sol supérieures à 50 $\mu g.m^{-3}$, les profils présentent presque toujours des maxima de concentration encore plus élevés à des altitudes variant rapidement à 6 heures près.

Le *tableau 3.II* présente les altitudes moyennes des maxima de concentrations simulés ainsi que des estimations d'altitudes de panaches d'aérosols minéraux déduites des images LIDAR rapportées sur la *figure 3.22*.

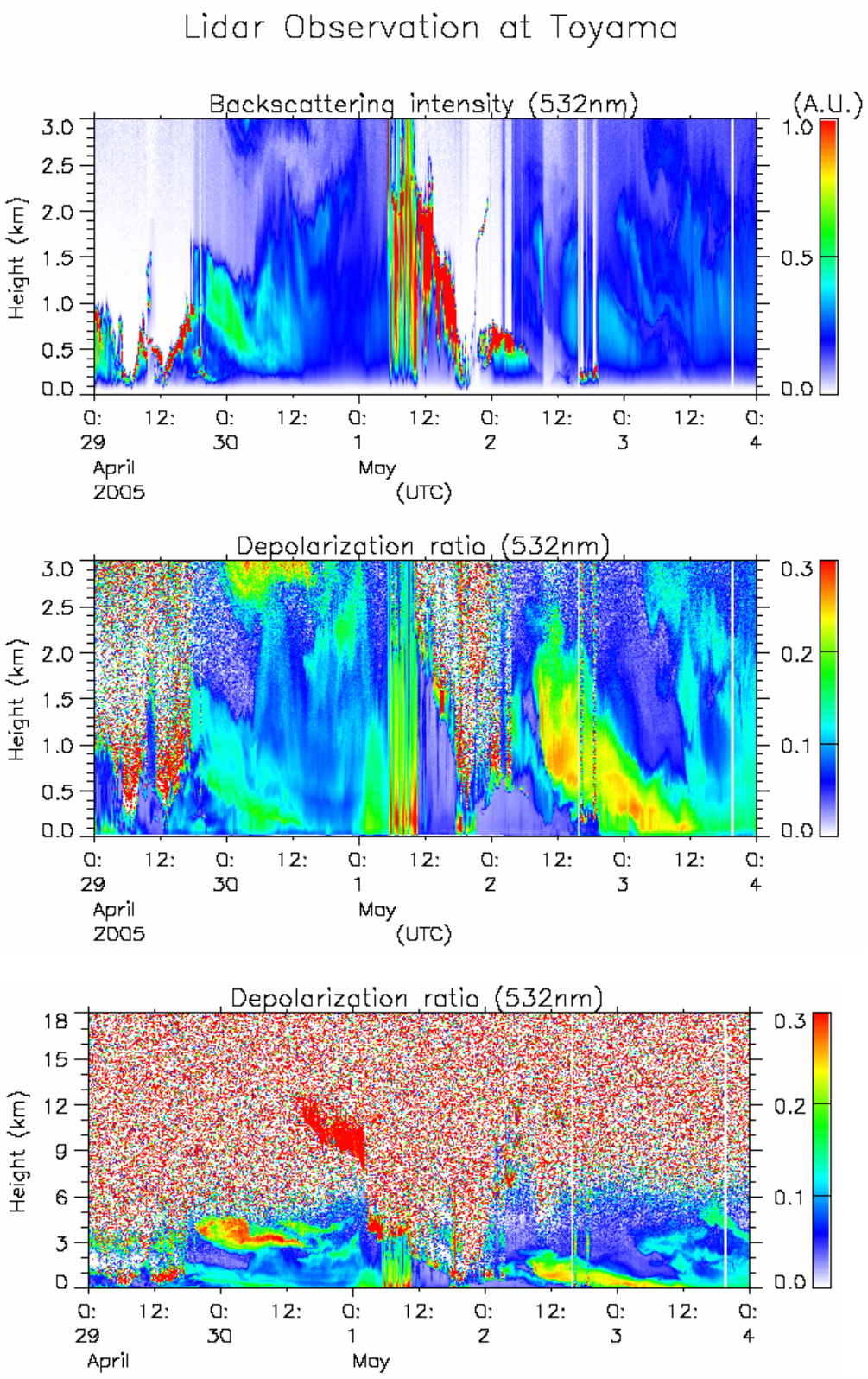


Figure 3.22 – figures d'intensité de rétrodiffusion et de taux de dépolarisation LIDAR sur Toyama, du 29 avril au 04 mai 2005. Images du haut : de 0 à 3000 m ; image du bas : vue complémentaire d'ensemble, de 0 à 18000 m

date et heure (TU)	altitude du maximum de concentration simulé	altitudes LIDAR des panaches d'aérosols minéraux
29 avril 00:00	2000 - 2500 m	800 - 1000 m, sous les nuages
29 avril 06:00	1000 -1500 m	500 – 1000 m, dans nuages ?
29 avril 12:00	1000 m	500 – 1000 m, dans nuages ?
29 avril 18:00	500 m	1000 m, sous les nuages
30 avril 00:06	sol	0 - 500 m, 2000 - 4000 m
02 mai 00:00	500 m	500-1000 m

Tableau 3.II : Altitudes de quelques maxima simulés de concentration en poussières minérales mise en vis-à-vis avec les estimations de ces altitudes déduites des images LIDAR (fig. 3.22)

On constate que la présence de nuages, en particulier le 29, empêche une lecture complète des altitudes des aérosols minéraux. Néanmoins, ceux-ci semblent se répartir sur 3 niveaux : dans les 1000 premiers mètres, autour de 3000 m mais peut-être aussi entre 9 et 12 km d'après les taux de dépolarisation observés à ces altitudes entre le 30 à 12 TU et le début du 01 Mai .

En tout état de cause, nous avons des difficultés à retranscrire cette stratification à la fois en intensité et en phase avec les mesures. Les simulations répartissent les maxima dans les deux premiers niveaux sans toutefois être synchronisées avec les mesures de façon satisfaisante.

Les charges colonne simulées sur la *figure 3.14.c* montrent à leur tour que les transports se produiraient, d'après nos calculs, en altitude avant d'être proches de la surface. Nous représentons un maximum de charge colonne qui correspond à des observations de poussière le 29, mais nous échouons à rendre compte fidèlement des transports erratiques des 30 Avril et 1er mai.

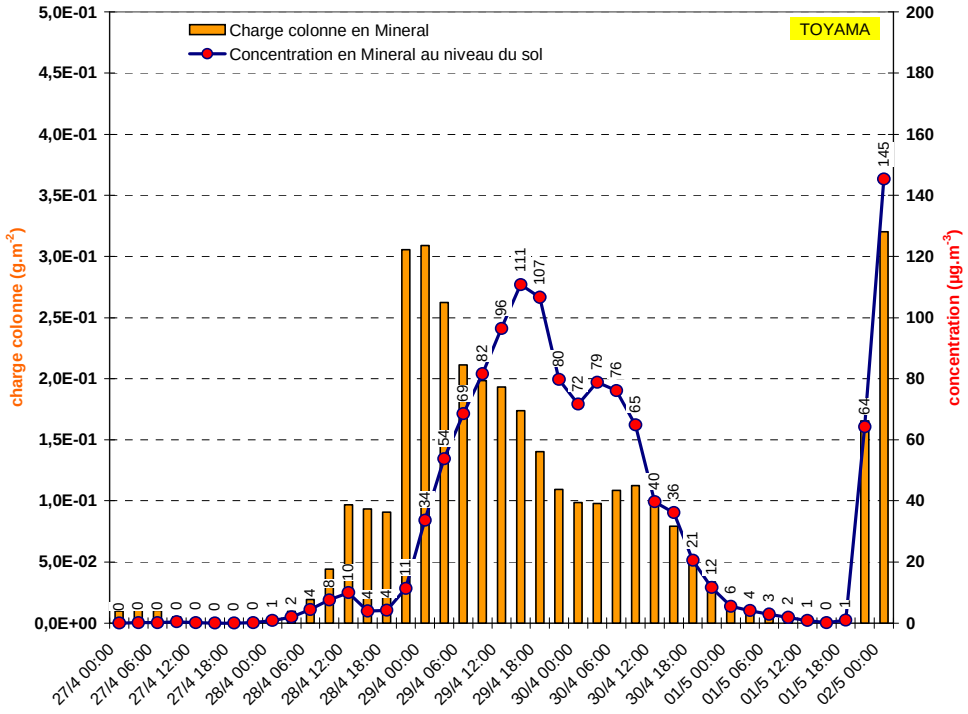


Figure 3.14.c – Toyama : idem 3.14.a (avec échelles spécifiques)

3.2.5 – Evolution de la granulométrie modélisée

N'ayant pas de point de contrainte (pas de granulométrie mesurée), nous nous contenterons ici de donner les résultats de la modélisation concernant ce paramètre. Nous ne distinguons pas les modes granulométriques en fonction de la source exacte de chaque quantité de poussière. Les modes de distribution granulométrique sont attribués de façon identique sur 20 classes de tailles à l'intérieur de toute masse d'aérosol minéral dès que celle-ci est injectée dans l'atmosphère, indépendamment du lieu exact de cette source.

Le devenir de chacun des modes de la distribution sera contrôlé, pendant le transport de ces poussières, par sa vitesse de chute gravitationnelle. La trajectoire suivie par la masse d'air portant les particules minérales intervient également dans l'évolution granulométrique si cette masse vient à se ré-enrichir en poussières durant son trajet. La trajectoire de la masse d'air peut croiser un autre masse de particules transportée et réaliser un mélange (l'addition) de ces deux masse, ce qui aura pour conséquence de réalimenter l'ensemble des modes granulométrique dans la masse d'air issue du mélange.

Les *figures 3.23.a* et *3.23.b* proposent un aperçu de la distribution granulométrique en masse, calculée au niveau du sol, pour les différentes villes retenues comme lieux d'études. Les teneurs en masse décroissent logiquement depuis Hohhot jusqu'à Toyama, en passant par Beijing. On notera que ce sont évidemment les particules les plus grandes, donc les plus lourdes à masse volumique identique, qui contribuent de moins en moins à la masse totale de l'aérosol minéral au fur et à mesure que l'on s'éloigne des zones sources continentales. Par exemple, en moyenne sur 5 jours et pour le mode grossier de rayon 11.51 µm, la masse en aérosol de cette taille n'est, à Beijing, que 39.3 % de la masse de cette taille calculée à Hohhot et ne contient plus que 1,4 % de cette masse initiale lorsque les poussières arrivent à Toyama. A l'opposé, sur le mode des 0.1 à 1 µm, on constate que les proportions de chaque classe diminuent dans les mêmes proportions d'une ville à l'autre, ces particules étant beaucoup moins sensibles aux effets de gravité que les précédentes.

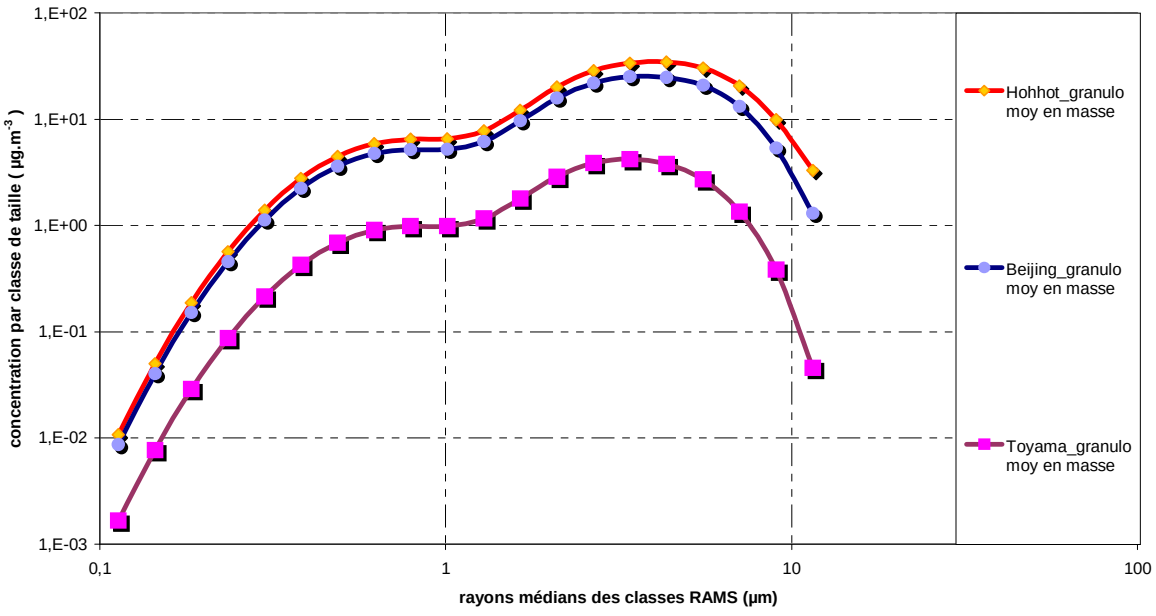


Figure 3.23.a – Distribution granulométrique en aérosols minéraux à Hohhot (jaune), Beijing (bleu) et Toyama (rose) : les concentration en masse par volume d'air sont les valeurs moyennée sur 5 jours,.

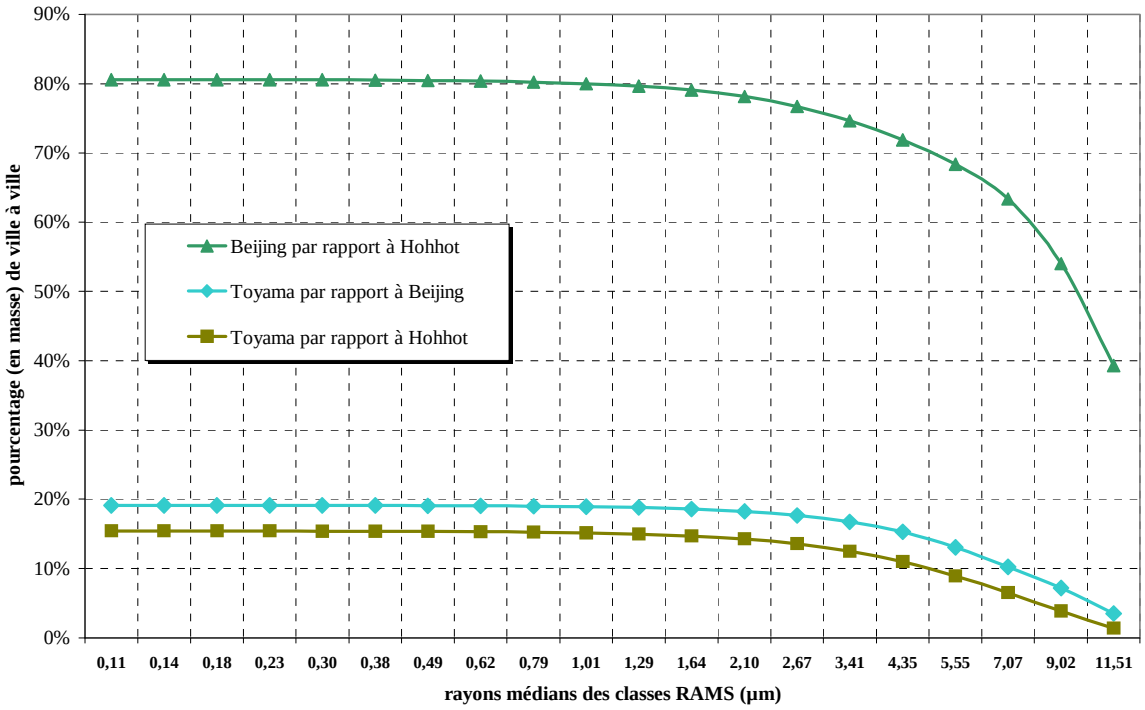


Figure 3.23.b – Evolution, en pourcentage de la concentration en masse d'aérosol minéral, moyennée sur 5 jours, d'une ville à une autre ville. ex : la courbe « Beijing par rapport à Hohhot » décrit le pourcentage de masse de minéral, par rayon, à Beijing, relativement à la masse de même classe de taille à Hohhot.

3.3 Conclusion

En conclusion, dans ce chapitre 3, nous avons présenté des résultats relatifs à la validation et à l'utilisation d'un cadastre d'émission éolienne, inclus dans un modèle méso-échelle. Ce modèle peut ainsi représenter le cycle de l'aérosol désertique en Asie orientale : mobilisation, transport et dépôt. Pour la mise au point du cadastre d'émission, nous avons suivi une procédure de « tuning » sur un événement (1998), puis validé sur un second événement bien distinct (2002), ainsi que sur un troisième événement (2005). Il semble que notre cadastre soit suffisamment réaliste pour représenter tout au moins les grands traits des événements de poussières en Chine et Mongolie. Sur le continent, les calculs semblent en bon accord de phase et d'amplitude avec les données d'observation. Pour les transports à plus grande distance, notamment vers le Japon, la complexité de la circulation atmosphérique sur la Mer de Chine et la Mer du Japon rend la modélisation relativement délicate. Une des

difficultés de l'exercice de validation réside dans la relative rareté des données d'observation, ainsi que dans une certaine hétérogénéité de la qualité de ces dernières.

La simulation du troisième événement (2005) a, tout naturellement, servi à continuer la validation de notre modélisation. Cependant, ce dernier exercice n'avait pas pour seul but de conforter cette validation. Il a été effectué principalement en vue de décrire, sur une période d'une demi-douzaine de jours, le cycle de certains des principaux polluants atmosphériques, naturels (désertiques) mais aussi anthropiques. Cette étude complète est décrite au chapitre 4.

Chapitre 4
Modélisation simultanée des aérosols désertiques et de polluants anthropiques en Asie orientale.

Le chapitre précédent ayant servi à éclairer quelques points spécifiques du cycle de l'aérosol minéral sur la zone Chine-Corée-Japon, nous allons à présent aborder un cas plus général.

En effet, la pollution anthropique est un élément quasi-permanent du climat des mégalopoles asiatiques et des régions qui les environnent. A Taiwan, la fraction minérale représente ordinairement moins de 28 % du total des particules submicroniques mais, cette teneur peut être quasiment doublée si une tempête de sable venant du continent chinois atteint cette île. Cependant, des cas ont été observés où, malgré l'arrivée de poussières minérales, la pollution locale était telle qu'à ces occasions la proportion de minéraux n'a pas dépassé 24% [Tsai et al., 2004]. Il apparaît incontournable, sur cet exemple parmi d'autres, de devoir prendre en compte l'aérosol anthropique en plus de l'aérosol naturel si l'on souhaite avoir une vue correcte du cycle de l'aérosol asiatique.

Nous avons choisi, par souci de simplification, de ne considérer qu'un nombre restreint de polluants anthropiques, en supposant qu'ils sont représentatifs de ce phénomène. Nous nous posons d'abord la question du choix du cadastre pour ces polluants. Ensuite, nous examinons leur cycle atmosphérique, et leurs interactions éventuelles avec les aérosols minéraux. Enfin, nous chercherons à relier les champs de polluants naturels et anthropiques avec les données de télédétection disponibles: satellites encore, mais surtout mesures d'épaisseur optique réalisées en surface (photomètres). Nous nous appuierons aussi, à chaque instant, sur la bibliographie disponible.

4.1 Les polluants anthropiques

4.1.1 - Les aérosols anthropiques retenus dans cette étude

Parmi les multiples polluants anthropiques susceptibles d'avoir des conséquences sur les climats locaux en Asie nous limiterons notre étude à deux familles chimiques:

1. les principaux éléments soufrés, c'est-à-dire le dioxyde de soufre SO_2 , et ses dérivés oxydés, soit gazeux H_2SO_4, soit encore ions sulfates SO_4^{2-} ;
2. le carbone à l'état de suies et particules agglomérées issues de combustions incomplètes, regroupées sous ses diverses formes dans l'appellation générale *Black Carbon* (BC).

Liu et al.,[2005] ont procédé aux analyses microscopiques et à la caractérisation chimique des poussières minérales et des particules contenant l'élément soufre dans les tempêtes de sable survenues sur Beijing au printemps et à l'été 2000. Ces analyses détaillent l'extrême difficulté du travail d' « inversion » qui consiste à chercher les conditions météorologiques (humidité relative, couvert nuageux) de la conversion du SO_2 gazeux en dérivés soufrés. Ces difficultés à mesurer les concentrations en polluants pour en déduire leurs sources primaires à partir de leur composition ne sont pas moins importantes pour ce qui concerne les suies carbonées mélangées aux poussières minérales comme le montrent par exemple Shi et al., [2003], toujours sur Beijing.

Nous sommes tout à fait conscients que les dérivés azotés devront obligatoirement être pris en considération si l'on souhaite, à terme, disposer d'une modélisation satisfaisante des transports et des effets physico-chimiques des polluants anthropiques. Cependant nous ne pouvions raisonnablement, dans ce travail de première approche spécifique au continent Est-asiatique, prendre en compte l'intégrale complexité des polluants. Notre modeste ambition est, ici, de faire se rencontrer deux domaines d'étude: d'une part, une chimie simple de l'atmosphère proprement dite et, d'autre part, la modélisation de transport d'aérosols. Nous avons dû faire un choix d'espèces parmi les polluants les plus représentatifs dans le but de mettre en place des outils de travail susceptibles d'être, dans le futur, adaptés à tous types de polluants. En ce qui concerne les dérivés azotés, nous citerons, le cas échéant, certains phénomènes où les polluants soufrés que nous considérons interviennent dans des processus de transformations chimiques communs avec les produits nitrés.

4.1.1.a - *Les composés soufrés et leur prise en compte dans ce travail*

Les besoins énergétiques chinois sont principalement comblés par la combustion d'un charbon de piètre qualité (jusqu'à 5 % de soufre) qui génère dans l'environnement de

considérables quantités de dioxyde de soufre. Près de 70 % de l'énergie fournie aux Chinois est produite à base de charbon et, d'après les statistiques du gouvernement chinois, les émissions de SO_2 en Chine étaient de l'ordre de 20 Mt en 2000 dont 85% provenaient directement de la combustion de charbon [Yang et al., 2002].

Outre les conséquences immédiates et évidentes sur la santé publique, le dioxyde de soufre est à la base de la formation des pluies acides, et, à l'heure actuelle, plus de 30 % du territoire de la Chine subit les conséquences des pluies acides. Ces pluies compromettent la santé principalement de la faune et de la flore marine, l'acidification des cours d'eau étant le plus souvent un phénomène irréversible à moyen terme. Ces pluies sont foncièrement « acides » car elles ont un pH bien inférieur à 5.6 alors que les pluies « normales » ont un pH aux environs de 5.6. Quelques régions de Chine subissent régulièrement des précipitations de pH inférieur à 3.5, et certains épisodes de pluie de pH inférieur à 2.8 ont été enregistrés [Sinton et al., 1996]. Le problème est moins aigu en Chine orientale et méridionale (pH compris entre 4.5 à 5.0). Seules quelques villes du Nord et du Nord-est de la Chine (Qingdao, Shijiazhuang, Taï-Yuan, Tumen) sont régulièrement concernées par des pluies acides.

Nous ne calculons pas de quantités de pluies acides dans nos simulations RAMS, mais pour expliquer un peu mieux l'importance écologique du SO_2 par rapport à ce type de pollution, nous pouvons rappeler que, de façon simplifiée, les deux principales sources d'acidité des pluies sont :

- l'acide sulfurique H_2SO_4, issu du dioxyde de soufre SO_2 émis par les centrales électriques thermiques (surtout à charbon), diverses industries et les véhicules automobiles;
- l'acide nitrique HNO_3, formé à partir des oxydes d'azote NO_x, provenant pour partie de la circulation automobile.

D'après les résultats de simulation mis en ligne par Aki et al., [1999-2005], le Japon n'est pas en reste dans la pollution par le soufre. Les auteurs évaluent les émissions anthropiques japonaises de soufre à la fin des années 1980 à 0.435 Mt, soit moins de 5% des émissions Est-asiatique de l'époque, estimée être d'environ 11.5 Mt/an. Les dépôts annuels totaux sur l'archipel japonais étaient estimés à 1.50 Mt soit près de 2.4 fois les émissions nationales. Aki et al., [1999-2005] référencent les sources et puits principaux de soufre: les émissions anthropiques et les émissions volcaniques pour les sources, le dépôt humide et le dépôt sec pour les puits, les uns comme les autres étant proches en ordre de grandeur

(l'émission biogénique était relativement petite) et malheureusement tous entachés de fortes incertitudes. En moyenne, au Japon, le rapport de l'émission anthropique aux dépôts secs et humides confondus était de plus de 2 au Nord de la chaîne montagneuse centrale exposée à la Mer du Japon. En revanche, ce rapport serait inférieur à 2 dans les régions méridionales du Sud du Japon où est concentrée l'activité industrielle. Pour résumer, ces calculs, relatifs à une situation non démentie à ce jour, montrent que l'apport de pollution exogène joue un rôle important dans le bilan quantitatif des retombées de soufre sur ce pays. L'analyse météorologique montre que certaines concentrations élevées de sulfate sont d'origine continentale et sont transportées vers le Japon par des vents de Nord Ouest particulièrement fréquents pendant la saison froide.

Au vu de cette disposition climatique régionale, la Corée peut elle aussi être partie prenante dans la pollution régionale par les SO_2, à la fois comme zone d'émission à destination du Japon et comme zone de réception de dérivés soufrés en provenance de la Chine. Hatakeyama et al. [1995] ont par exemple mesuré par avion, au mois de Novembre 1992, des concentrations en SO_2 au-dessus de la Mer du Japon dépassant les 10 ppb (supérieures à 20 $\mu g.m^{-3}$), c'est-à-dire des concentrations de polluants très probablement éjectés depuis la péninsule coréenne. Pour les sulfates non-marins (nss-SO_4^{2-} : *non sea salt sulfate*) qui se déposent sur la Corée - par exemple à Gosan où le bruit de fond est de 6.74 $\mu g.m^{-3}$ [Park et al., 2004] - et qui trouvent sans aucun doute leurs sources en Chine, on estime à un facteur 10 l'accroissement moyen du ratio molaire des sulfates sur les cations Ca^{2+} solubles dans l'eau, passant de 0,1 sur la Chine à l'unité [Arimoto et al., 2004] en Corée du Sud.

Nous considérerons le « soufre » comme étant émis sous forme de gaz SO_2. Une fois injectée dans les premiers niveaux du modèle RAMS (les quelques premières dizaines de mètres au dessus du sol, voir paragraphe suivant 4.1.2), la masse de soufre se répartira selon les chemins illustrés par la *figure 4.1*. Une partie reste sous forme de gaz SO_2. Cependant, le dioxyde de soufre peut être capturé (adsorbé) par l'aérosol minéral, un processus que nous avons modélisé dans ce travail [Adams et al, 2005].

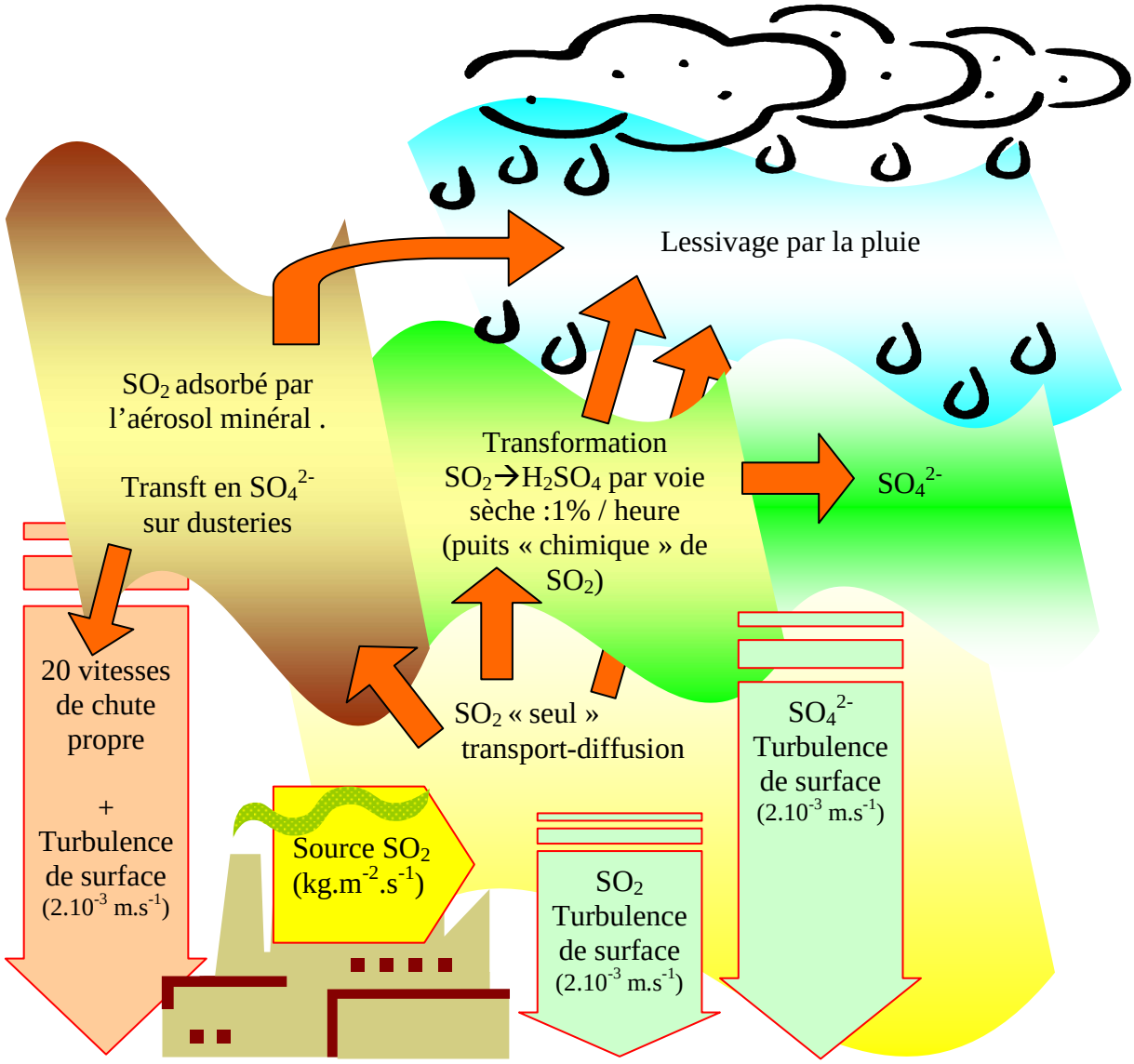


Figure 4.1 – Traitement des composés soufrés pris en compte dans les simulations RAMS de transport/capture en présence de particules minérales.

L'unique transformation chimique explicitement considérée dans notre modèle est celle de SO_2 en H_2SO_4 gaz que nous supposerons rapidement transformé en SO_4^{2-} (sulfate), à cause de l'humidité présente dans l'air. Nous ne modélisons pas, mais nous considérons comme très probable l'oxydation en sulfate (si la température ambiante est suffisante) du SO_2 après son adsorption par les particules minérales. Cet aspect du cycle conjoint des aérosols minéraux et sulfatés est par exemple détaillé par Kulshrestha et al. [2003] pour des mélanges secs de SO_2 et de poussières en Inde. Dans le domaine granulométrique, Chiapello [1996]

trouve le sulfate dans le mode grossier au Cap Vert quand des poussières viennent du continent africain. Dans les autres cas, il est présent dans le mode submicronique.

Nous avons opté, dans notre modèle, pour un taux de conversion sèche $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ de 1 % / heure, avec $d[SO_4^{2-}] = -1.5\ d[SO_2]$, où $d[SO_2]$ représente la quantité de SO_2 transformée en sulfate à chaque pas de temps. Le coefficient 1.5 a pour objet de tenir compte du rapport des masses molaires, sans limitation de production de sulfate SO_4^{2-} si du SO_2 est disponible. Les taux de transformation sèche de SO_2 en SO_4^{2-} dans l'atmosphère dérivés de la littérature s'échelonnent sur plus d'un ordre de grandeur. Par exemple, Cox [1974] estime ce taux à 1~10 % / heure dans une panache urbain. Eliassen et Saltbones [1975] estiment un taux de transformation d'environ 0.7 % / heure. L'évaluation par Alkezweeny et Powell [1977] à partir des données atmosphériques mesurées par avion est de l'ordre de 10 à 12 % / heure, dans une atmosphère qui peut contenir plus d'eau que les études précédentes.

Le dépôt sec des composés soufrés (à l'exception de ceux capturés par les poussières) est traité d'une manière similaire à celle préconisée par Carmichael et al., [2001] dans leurs modélisations au sein du groupe MICS-ASIA . Ce groupe de travail, MICS-ASIA, s'est prêté au jeu des intercomparaisons de modélisations de transports longues distances et de dépôts de SO_2. Dans le rapport relatif à la simulation de mesures effectuées en Asie de l'Est en Janvier et Mai 1993 [Carmichaël et al., 2001], il est précisé que les données météorologiques partagées par les modèles sont les champs 2D et 3D issus des calculs RAMS du professeur Itsushi Uno. Notons, par ailleurs, que les auteurs ont choisi de répartir les émissions en 95 % de SO_2 et 5 % de SO_4^{2-}, injectés dans la première couche, non comprises les émissions volcaniques injectées à 1500 m. . Concernant les vitesses de dépôt turbulent, Xu et Carmichael [1998] ont étudié en détail les vitesses de dépôt sec du dioxyde de soufre et des sulfates, en Asie. Leur modèle établit une forte dépendance saisonnière ainsi qu'une variabilité journalière, toutes deux liées, entre autre, à la nature de la surface de dépôt sous-jacente. La vitesse de chute « sèche » diurne de SO_2 en été serait de 0.4-0.5 $cm.s^{-1}$ au dessus de forêts et prairies, de 0.2 $cm.s^{-1}$ au dessus de cultures et de 0.8 $cm.s^{-1}$ sur les océans, avec des valeurs 2 à 3 fois plus faibles de nuit. Les sulfates, eux, auraient une vitesse de chute « sèche » moins fluctuante, inférieure à 0.1 $cm.s^{-1}$. Les paramètres employés par MICS-ASIA pour la gestion chimique et dynamique des sulfures sont indiqués sur le *tableau 4.I*, avec en particulier le taux de conversion $SO_2 \rightarrow SO_4$. Aux latitudes intermédiaires (35°N à 45°N) le taux de conversion est proche de $K_0 = 1.10^{-5}\ s^{-1}$, ce qui correspond à une transformation de

60% en une journée. A l'évidence, les processus impliqués ne sont pas simplement des processus en phase gazeuse. Les champs sont initialisés sur une durée de 48 heures. Notons que nous adoptons une période de « spin-up » de cet ordre de grandeur, voire parfois un peu plus, pour nos propres modélisations.

Parameter	Conditions	Value
SO_2 deposition velocity (cm s^{-1})	land (April-Sept.) land (otherwise) sea	0.25 0.125 0.32
SO_4 deposition velocity (cm s^{-1})	land sea	0.2 0.1
$SO_2 \rightarrow SO_4$ conversion rate (s^{-1})		$K_0\, f(\lambda) + K_1 [1 - f(\lambda)]\, g(J)$ where: $K_0 = 1 \cdot 10^{-5}$ $K_1 = 4 \cdot 10^{-6}$ $f(\lambda) = \cos [1.3 \cdot \lambda \cdot \pi / 180]$ $g(J) = \sin [(J - 80) \cdot 2\pi / 365]$
SO_2 wet removal rate constant (s^{-1})		$2 \cdot 10^{-5} P$
SO_4 wet removal rate constant (s^{-1})		$5 \cdot 10^{-5} P^{0.83}$

λ is latitude (°N), J is the Julian day and P is the precipitation rate (mm hr^{-1}).

Tableau 4.I – Données relatives aux espèces SO_2 et SO_4^{2-} dans l'exercice d'intercomparaison de modèles MICS-ASIA, d'après [Carmichaël et al., 2001].

En substance, Carmichaël et al., [2001], constatent que les prédictions du groupe de travail montrent des disparités, pour le résultats de concentrations des deux espèces soufrées (SO_2 et sulfates). Pour la Chine, les estimations de concentrations variant facilement d'un facteur 10 d'un modèle à l'autre. Les auteurs expliquent que des causes nombreuses, et parfois différentes, influencent les résultats des modèles employés. Ceux-ci sont particulièrement sensibles au rapport direct qui existe entre le dépôt humide des sulfates et les précipitations d'une part, et l'estimation du dépôt sec des SO_2 d'autre part.

L'interaction, au sens général du terme, des aérosols avec l'eau condensée se limite, dans notre modélisation, au processus de lessivage par les pluies (*washout*) car nous estimons que le lessivage intra nuageux (*rainout*), s'il a pu avoir lieu, n'influe que de manière marginale sur le bilan de matière en aérosols libres. Nous supposons que la plus grande partie des aérosols capturés par l'eau nuageuse sera en effet « relarguée » au cours de l'évaporation

du nuage. Nous considérons simplement la capture par l'eau de pluie. Il n'est pas calculé explicitement, dans ce travail, de conversion $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ par voie aqueuse. Signalons à ce sujet que, de leur étude des transports de polluants primaires et secondaires au dessus des mers de Chine et du Japon durant les campagnes de mesure ACE-Asia et TRACE-P, McNaughton et al., [2004] ont conclu qu'après environ 2 jours de transports depuis leur région d'émission, seuls 10 % à 30 % de l'aérosol de pollution sont constitués par des aérosols secondaires et transformés. En dépit d'une production élevée au cours de processus de nucléation, les aérosols secondaires advectés au-dessus de l'Océan Pacifique auront, d'après ces auteurs, un faible impact en terme d'effet radiatif indirect et un effet direct négligeable en comparaison des flux d'émissions d'aérosols primaires et des espèces qui condensent sur ces derniers.

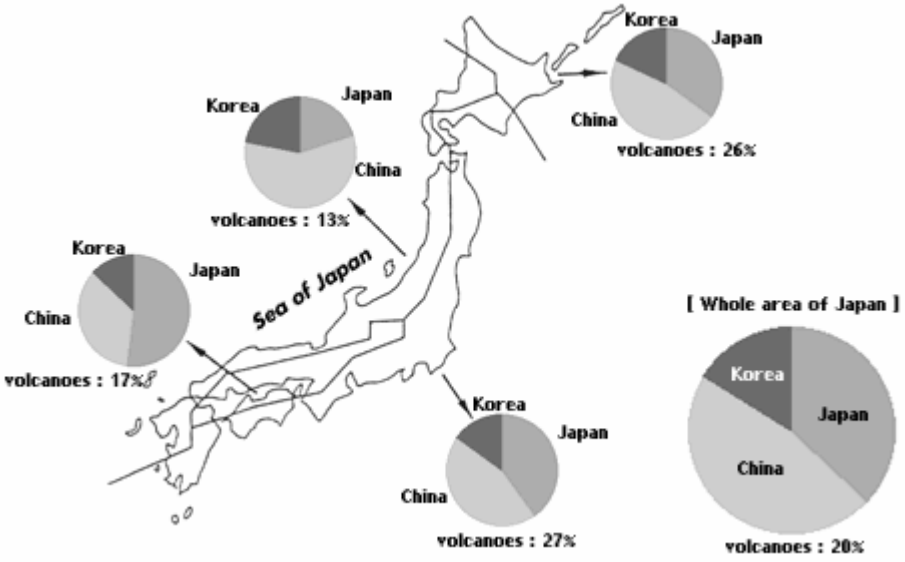


*Figure 4.2 – Proportions relatives (cercles) des origines géographiques des sulfates anthropiques déposés par voie humide sur le Japon découpé en quatre secteurs géographiques. Les contributions volcaniques aux dépôts totaux des aérosols volcaniques sont indiquées sous les cercles. D'après Ichikawa et Hayami (*http://www.glocom.ac.jp/eco/esena/resource/ichikawa/index.html*).*

Nous pouvons proposer d'autres illustrations de résultats de simulation produits par des équipes de recherche engagées dans l'étude de ces processus météorologiques. Ichikawa et Hayami (http://www.glocom.ac.jp/eco/esena/resource/ichikawa/index.html) ont calculé les dépôts de sulfate spécifiquement par voie humide sur le Japon. Ils ont simulé les quantités

déposées et distingué les origines géographiques de ces dépôts. La *figure 4.2* reprend ces résultats et vient en complément des remarques tirées de Aki el al. [1999-2005] cité plus haut.

Le site de l'équipe du Pr. Uno http://atmet.com/html/workshop/presentations/uno.pdf présente les 2 modes de conversion de SO_2 utilisés pour sa simulation des concentrations de composés soufrés en phase gazeuse ou aqueuse, ainsi que les résultats en moyennes glissantes à 10 jours des concentrations en SO_2 et SO_4^{2-} sur différents sites au Japon. Les concentrations mesurées en sulfates sur Osaka en Avril-Mai sont ainsi environ deux fois inférieures à celles de la moyenne de Mai à Beijing mais on relève un pic à 18 $\mu g.m^{-3}$ de sulfates au début du mois de Mai.

Dans le rapport sur l'exercice d'intercomparaison de simulation du cycle des sulfures intitulé COSAM et impliquant 11 modèles globaux, Roelofs et al. [2001] proposent leurs synthèses concernant les résultats de ces modèles appliqués à des aires géographiques relativement restreintes pour ce type d'outil de simulations: l'Est de l'Amérique du Nord, l'Europe et l'Est Sud-Est asiatique. Les sources principales de SO_2 sur toutes les régions sont réputées être les sources primaires, de cadastres connus. Précisons dès à présent que nous aurons à comparer les cadastres d'émissions primaires disponibles pour l'Asie, car le cadastre des émissions est un élément crucial de la simulation, et nous avons constaté des disparités qui peuvent être source d'erreurs très importantes (ce point sera détaillé au paragraphe 4.1.2). Les sources secondaires de SO_2, i.e. les produits de l'oxydation des DMS varient, elles, énormément selon les modèles employés mais cela se révèle être de moindre importance sur le bilan régional du SO_2 à ces échelles. Le dépôt sec est considéré dans les modèles comme le puit principal de SO_2, absorbant 50 % des émissions en hiver et 30 % en été avec des écarts relatifs de 15 % d'un modèle à l'autre. Le dépôt humide est considéré comme suffisamment peu important pour ne pas influer de façon significative sur les différents bilans saisonniers proposés. En hiver, l'oxydation en phase gazeuse par le radical OH serait un puit chimique en SO_2 de l'ordre de 10 %, taux montant à 20 % sur la période estivale (avec une incertitude relative entre modèles de 35-45 %). L'oxydation en phase aqueuse enlèverait pour sa part 42 % du SO_2 sur un an pour l'ensemble des régions appréhendées, avec une incertitude relative entre les modèles variant de 25 à 65 % ce qui n'est pas sans laisser des interrogations sur l'exactitude des bilans de quantités de soufre déposées [Roelofs et al., 2001].

Pour Tang et al. [2004], qui utilisent le modèle méso-échelle STEM-2K1, les simulations des réactions hétérogènes dans les couches de surface montrent une réduction en

moyenne (sur le domaine ACE-Asia pris en compte du 04 au 14 avril 2001) de 55 % en SO_2 en présence de poussières. Dans des conditions de tempêtes intenses, ces réactions augmenteraient la production de sulfates de près de 20 % et celle de nitrates de 70 % dans le mode grossier.

L'équipe du prof. Z. Han met en ligne les principaux résultats de son modèle RAQM appliqués à la simulation des polluants soufrés et nitrés sur la zone Chine-Corée-Japon (www.iiasa.ac.at/rains/meetings/6thMICS-Asia/papers/han.doc). Aux mois de mars 2001 et 2002, la concentration moyenne en SO_2 autour de Beijing s'échelonnerait d'après Han et al. entre 25 et plus de 50 ppb (en volume, soit environ entre 60 et plus de 120 $\mu g.m^{-3}$) tandis que Tokyo serait le siège de concentrations supérieures à 200 ppb (plus de 500 $\mu g.m^{-3}$). L'équipe Han et al. fait partie d'un groupe de travail qui se consacre à la compréhension de la chimie atmosphérique en Asie : RAINS-ASIA, dont on pourra lire les comptes-rendus de travaux sur http://www.iiasa.ac.at/~rains/asia2/reports.html.

Pour la validation de nos simulations des composés soufrés en Chine, nous manquons de relevés en surface, et l'on peut donc se poser les questions suivantes : quels ordres de grandeur retenir en ce qui concerne les concentrations en SO_2 en Chine ? Et tout particulièrement sur Beijing, ville substantiellement soumise aux pollutions anthropiques et minérales ?

Dans leur étude médicale sur les effets mortifères de la pollution par SO_2 à Beijing, Xu et al., [1994], rappellent pour leur part que des valeurs extrêmes instantanées intra urbaines de 630 $\mu g.m^{-3}$ ont été atteintes en 1989, avec une moyenne annuelle de 102 $\mu g.m^{-3}$. Cette moyenne annuelle urbaine d'environ 100 $\mu g.m^{-3}$ est en bon accord avec les indicateurs gouvernementaux comme le montre la *figure 4.3* . Si l'on en croit ces statistiques, et elles semblent corroborées par l'ensemble de la littérature, l'on peut constater qu'en 2001 de très nombreux centres urbains chinois étaient exposés à des moyennes annuelles de concentrations volumiques en SO_2 supérieures ou égales à 100 $\mu g.m^{-3}$.

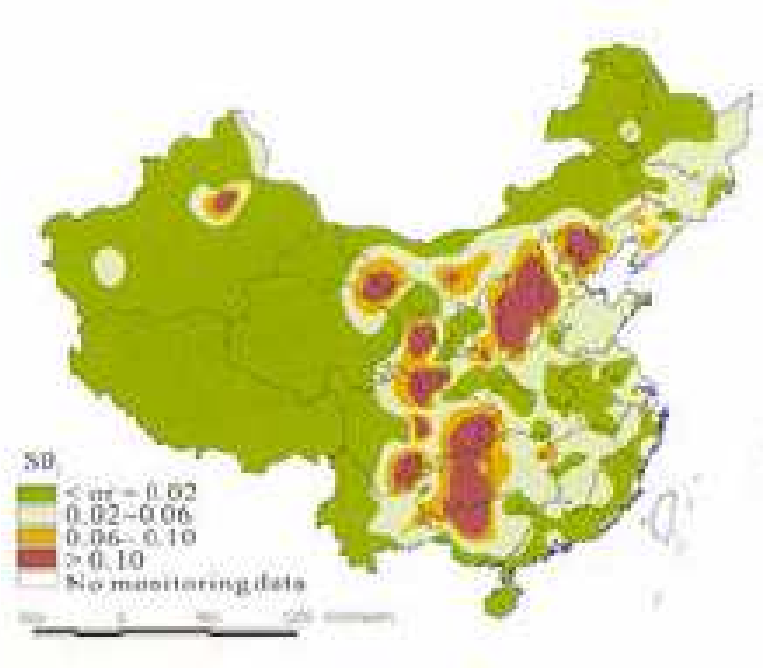


Figure 4.3 – Carte des moyennes annuelles des concentrations de surface en SO_2 en Chine, (unités: $mg.m^{-3}$), pour l'année 2001, d'après le SEPA (State Environmental Protection Agency).

Pour en terminer avec ces données sur les pollutions soufrées, nous allons fixer également quelques ordres de grandeurs relatifs aux concentrations en sulfates SO_4^{2-}.

Dans leur étude consacrée à la composition ionique des $PM_{2.5}$ à Beijing, Yao et al. [2002] proposent comme principal mode de production de sulfates : (i) l'oxydation en phase gazeuse du SO_2 en hiver, (ii) un processus interne aux nuages en été, plus rapide à cause de la présence de la phase aqueuse, qui favorise et accélère cette oxydation. En se basant sur la distribution des quantités des espèces ioniques et le rapport molaire du sulfate au SO_2, Yao et al. [2003] ont complété leurs approches sur les mécanismes de formation de l'aérosol secondaire sur Beijing. Pendant l'été, le sulfate était principalement localisé dans les particules fines avec un diamètre aérodynamique médian en masse de 0.7 ± 0.1 µm. La formation de sulfate au printemps suivrait des processus hétérogènes non nuageux caractérisés par un diamètre aérodynamique médian en masse de 0.45 ± 0.05 µm, les auteurs insistant sur le fait que la conversion de SO_2 en SO_4^{2-} en processus nuageux était beaucoup plus la règle en été qu'au printemps. En étudiant le rapport $[SO_4^{2-}] / [SO_2]$, Yao et al. [2002] constatent une variation annuelle de ce rapport entre 16% et 79 % à Shanghai sans observer de diminution en

hiver malgré la baisse de température ambiante ce qui laisserait penser que l'oxydation en sulfate ne serait pas locale mais la conséquence d'un transport à longue distance et/ou le produit de processus aqueux/nuageux catalysés par des métaux. Sur Beijing, la concentration en SO_4^{2-} au printemps évolue autour de la concentration moyenne annuelle qui est de l'ordre de 17-18 $\mu g.m^{-3}$. Toujours en ce qui concerne Beijing, Zhang et al [2004b] illustrent l'extrême variabilité des concentrations en sulfates liées aux effets photochimiques diurnes et aux conditions de précipitations. La *figure 4.4* montre ces écarts de concentrations saisonniers et horaires en 2000 qui s'articulent autour d'une concentration de l'ordre de 20 $\mu g.m^{-3}$ au mois de Mai, valeur sensiblement inférieure aux résultats des simulations de Han relatives au SO_2. Notons qu'à l'instar de ce que présente la *figure 4.4* au mois de juin 2000, à Beijing des maxima de concentration en SO_4^{2-} ont aussi été mesurés aux alentours de 60 $\mu g.m^{-3}$ en hiver, courant Novembre 1999 et janvier 2000 [Yao et al., 2002].

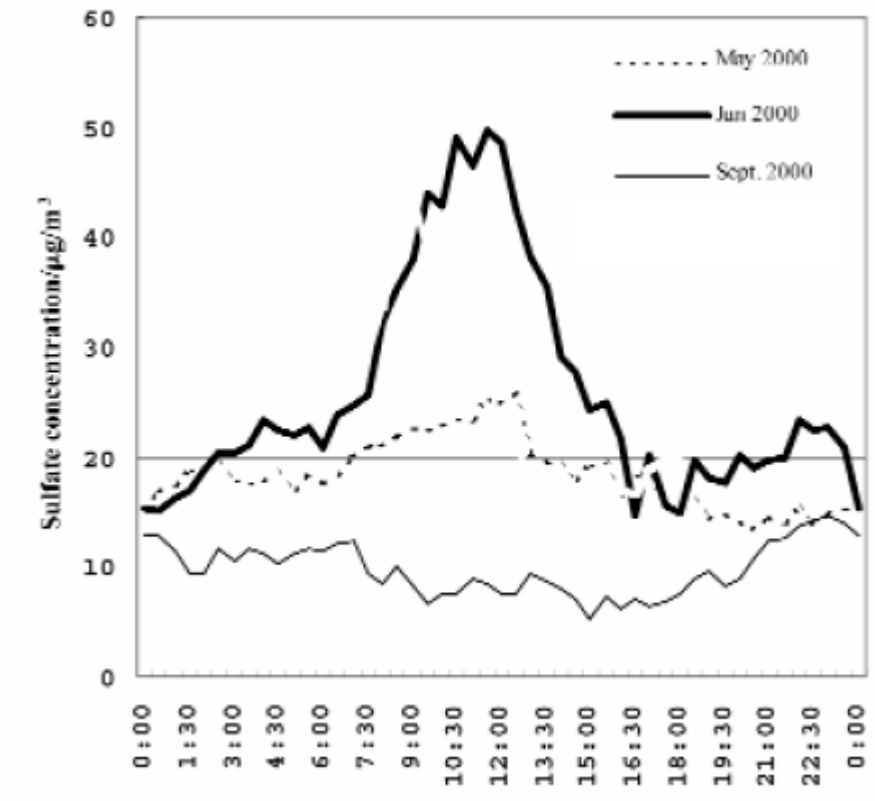


Figure 4.4 – Variations diurnes pour 3 mois distincts des concentrations en sulfates (unités : $\mu g.m^{-3}$) mesurées à Beijing [Zhang et al., 2004b].

4.1.1.b - *Les Black Carbon et leur prise en compte dans ce travail*

Les *Black Carbon* sont des produits de la pollution industrielle, des particules de carburants utilisés par les moyens de transports (diesel), des résidus des feux agricoles d'écobuages ou d'incendies forestiers et des combustions domestiques incomplètes de charbon et de biomasse. Les émissions de BC sont particulièrement importantes en Chine et en Inde où la cuisine et le chauffage sont souvent faits avec du bois, des brisures végétales, de la bouse de vache, du charbon, à des températures trop basses pour réaliser une combustion complète de ces matériaux. Mélangés à d'autres polluants émis à proximité, par exemple des carbones d'origine organique, les BC peuvent former ce qui est communément appelé des «suies noires». Pour l'ensemble du continent Est-Asiatique, la masse moyenne des émissions de BC est calculée par Reddy and Boucher [2006] à 2.04 Mt par an, ce qui représenterait 43% des émissions annuelles globales.

La présence de particules de BC dans l'air n'induit pas seulement une pollution nuisible à la santé humaine, elle affecte également les processus physiques (effets directs et indirects), chimiques (en tant qu'éléments suffisamment subdivisés ils favorisent la conversion SO_2 → SO42- [Novakov et al., 1974]) et photochimiques de l'atmosphère. C'est pourquoi les BC atmosphériques font l'objet d'études tant dans une optique de préservation de la santé publique que dans un souci de compréhension des changements climatiques [IPPC , 2001 ; Jacobson, 2001 ; Menon et al., 2002 ; Chylek et al., 1995].

On pourrait s'étonner de la réelle pertinence d'une étude consacrée aux BC si on regarde leur importance en masse, très inférieure à celle des polluants acides. Si l'on en croit les chiffres de Wang C. [2004], l'émission annuelle de BC à l'échelle planétaire est de l'ordre 14 TgC, ce qui signifie selon l'auteur que de possibles variations des émissions de BC auront de toute façon peu d'impact sur la valeur de la température moyenne du globe. Mais, en reprenant la conclusion de son étude " *The result of this study shows that the influences of BC aerosols on climate and environment are more significant in regional scale than in global scale. Important feedbacks between BC radiative effects and climate dynamics revealed in this study suggest the importance of using interactive aerosol-climate models to address the issues related to the climate impacts of aerosols*." ,([Wang C., 2004], souligné par nous), analyse qui va exactement dans le sens de notre démarche.

Les particules de BC absorbent fortement le rayonnement solaire. Quand les suies et autres particules de BC absorbent la lumière du soleil elle participent au réchauffement de l'air

dans la couche qu'elles occupent et réduisent dans le même temps la quantité de rayonnement solaire atteignant la surface. L'air réchauffé rend l'atmosphère ambiant plus instable, créant une convection ascendante propice, en Chine à la formation de nuages aptes, en retour, à produire des précipitations sur les régions qui sont fortement polluées. Cette situation s'observe en Chine mais la situation inverse (désaturation de la couche et inhibition subséquente de la formation des nuages) peut être observée sur le sous-continent indien [Minvielle, 2003] … En résumé, les BC ont des effets radiatifs (direct et semi-direct) complexes, associés d'ailleurs aux effets indirects d'autres polluants comme les sulfates provoquant, par exemple, une diminution moyenne globale de 5 % des rayons des gouttelettes nuageuses et une augmentation du même pourcentage en eau nuageuse [Kristjánsson, 2002].

Les mouvements ascendants d'air pollué et humide qui ont lieu en Chine méridionale ont tendance à être équilibrés par des subsidences d'air sec au Nord du pays, ce qui contribue à la désertification de cette partie de la Chine. Ces dernières années, le Nord de la Chine a souffert de fréquentes tempêtes de sables, alors que la Chine méridionale a subi des précipitations en quantités accrues. Menon et al [2002] voient dans les émissions anthropiques de polluants absorbants les principales causes de ces tendances climatiques régionales. Wu et al [2004] ont quantifié ce double impact climatique en Chine, détaillant comment les régions Sud sont de plus en plus soumises à des pluies renforcées par les BC et couplant ce phénomène à l'assèchement des masses d'air du Nord. En terme d'effet direct, ils ont calculé un refroidissement maximal de 1.5 K au Sud de l'embouchure du Yangtze Kiang (Fleuve Bleu).

Comme nous consacrons une part essentielle de nos travaux à l'analyse des transports d'aérosols dans le Nord de la Chine et tout spécialement à ceux ayant lieu sur la région de Beijing, regardons rapidement quelques valeurs spécifiques des concentrations atmosphériques de BC sur le continent Est-asiatique ainsi que sur la capitale chinoise.

Les BC sont rarement isolés dans la troposphère, on les retrouve la plupart du temps mélangés à d'autres polluants carbonés associant d'autres composés chimiques non gazeux, ainsi leurs origines se trouvent à la fois dans l'exploitation des carbones inorganiques (*Elemental Carbon* EC) et dans les combustions de carbones organiques (*Organic Carbon* OC). Par suite, une estimation maximale des teneurs en BC peut être approchée en sommant la totalité des carbones (*Total Carbon* TC) des types EC et OC (TC= OC + BC), sachant que, dans la littérature, les BC sont parfois directement assimilés aux EC quand ceux-ci ne sont pas explicitement définis comme des formes de carbone natif. Les mesures aériennes réalisées par

Huebert et al., [2004] donnent une idée des concentrations en carbone total sur les côtes chinoises de la Mer Jaune et sur la Mer du Japon. Ces mesures indiquent des concentrations de TC supérieures dans la couche limite atmosphérique (7.6 $\mu g.m^{-3}$ en moyenne) à celles obtenues dans la troposphère libre (3.1 $\mu g.m^{-3}$ en moyenne). En zone rurale continentale, à Lin'an, plus au Sud que les mesures précédentes puisque Lin'an se situe environ 200 km à l'Ouest Sud-Ouest de Shangaï, les TC mesurés valent 24 $\mu g.m^{-3}$ en moyenne de mi Février à fin Avril 2001, [Wang et al., 2004].

Certaines mesures de BC ont été effectuées durant ACE-Asia, en particulier à Hong-Kong (Chine), sur l'île de Cheju (Corée du Sud) et l'Ile Sado (Japon) et ce pendant 18 mois. Les valeurs médianes quotidiennes des masses en PM_{10} étaient respectivement de 33, 14 et 11 $\mu g.m^{-3}$ et celles des masses en $PM_{2.5}$ valaient 29, 16 et 9,1 $\mu g.m^{-3}$. La composition moyenne, en masse, sur l'ensemble des $PM_{2.5}$ des trois sites contenait, entre autre, environ (8.4 ± 4) % de BC, (7.7 ± 7) % de minéraux et (43 ± 14) % de sulfates d'ammonium [Cohen et al., 2004]. Toujours dans le cadre de ACE-Asia, Clarke et al. [2004] ont déterminé les mélanges et les propriétés optiques des BC éventuellement présents dans des panaches de poussières minérales. Ils ont constaté 85 % des BC subissant des mélanges internes avec des aérosols s'inscrivaient dans le mode d'accumulation et que les BC représentaient environ 5 à 15 % de la masse des mélanges.

Dans leur étude consacrée aux particules de BC à Beijing, Wang et al., [2005] rappellent certains faits importants. Ces dernières années, la consommation annuelle totale (industrielle et domestique) de charbon à Beijing était proche de 1500 Mt et augmente à raison de 3,8 % par an. Par ailleurs un cap de 2 millions de véhicules motorisés à été dépassé en 2004. Pour se donner une idée des concentrations moyennes en BC à Beijing au début de l'hiver, on pourra regarder les estimations des variations diurnes proposées par Wang et al [2005] et reportées sur la *figure 4.6.a* . Il semblerait que la pollution par BC tende à diminuer en moyenne depuis quelques années, malgré la consommation croissante de charbon … il n'en demeure pas moins que des concentrations de plusieurs dizaines de microgrammes par mètre cube étaient souvent mesurées (*figure 4.6.b*) en Octobre et Novembre 2000. L'article de Yu et al, [2005] montre que les variabilités des concentrations en BC, à l'échelle de 24 heures, sont plus importantes en hiver qu'en été mais les moyennes quotidiennes pour ces deux saisons sont du même ordre de grandeur.

Dans nos simulations, nous prendrons en compte le BC comme un scalaire unique, sans répartition spectrale en taille ou en masse, injecté selon un flux constant dans les premiers

niveaux du modèle, c'est-à-dire dilué sur la première centaine de mètres au-dessus de la surface et selon la lecture du cadastre de source expliqué au paragraphe suivant. Une fois ces suies carbonées en suspension, à la différence du SO_2, nous n'envisageons pas de capture par les poussières minérales. BC jouera donc le rôle d'un traceur inerte par rapport aux autres polluants. Sa dynamique de disparition de l'atmosphère sera gérée comme celle des composés soufrés (voir ci-dessus).

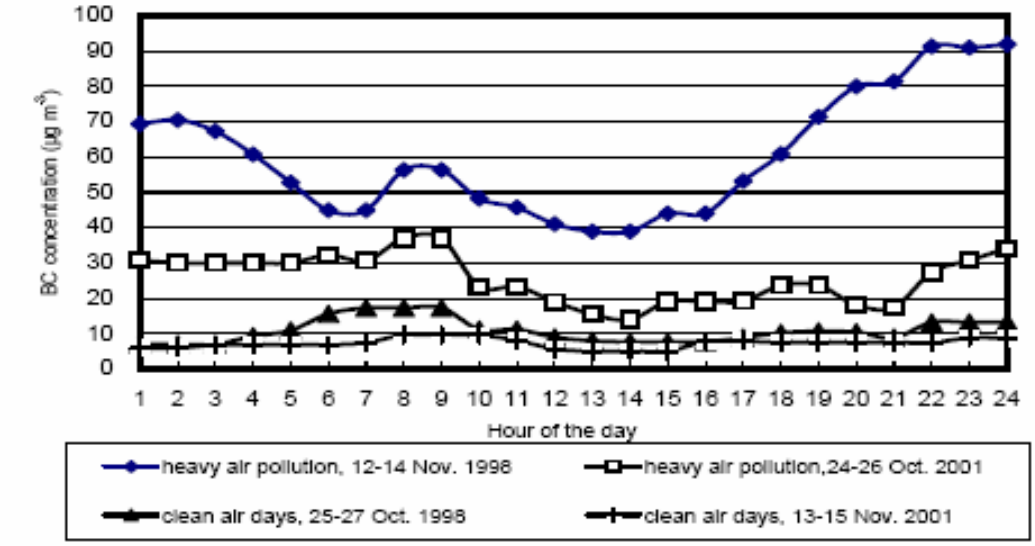


Figure 4.6.a – Variations des concentrations en Black Carbon mesurées à Beijing, selon différentes conditions météorologiques [Wang et al., 2005].

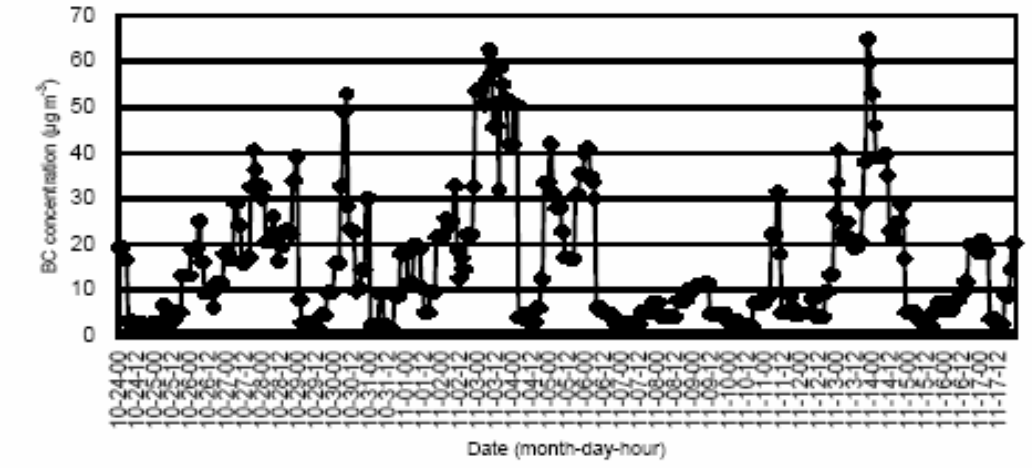


Figure 4.6.b – Concentrations biquotidiennes de Black Carbon à Beijing, mesurées du 24 octobre au 17 novembre 2000 [Wang et al., 2005].

4.1.2 - Analyse comparative de cadastres d'émissions de polluants anthropiques en Asie orientale

Certaines sources d'émissions de SO_2 et de BC sont mises à disposition sur des bases de données en ligne. Lors de travaux antérieurs, nous avons déjà eu recours à ces bases de données, par exemple les bases GEIA et EDGAR (détaillées plus loin) pour les simulations de la campagne INDOEX, [Minvielle et al, 2004]. Nous allons, dans ce paragraphe, comparer entre elles certaines sources.

Nous avons travaillé avec deux cadastres de flux d'émission par espèce chimique anthropique. Pour le dioxyde de soufre SO_2: la base de données EDGAR disponible sur le site http://www.mnp.nl/edgar/model/edgarv32/acidifying/ [Olivier et al., 1996] sera comparée à la base de données réalisée par Streets et al. [2003] (par la suite notée source "STREETS") et disponible sur le site http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA/index_16.htm. Ce site du CGRER (*Center for Global and Regional Environmental Research*) propose aussi le cadastre des flux d'émissions de BC, cadastre également désigné par « STREETS », que l'on comparera à celui fourni par la base de donnée GEIA sur son site http://www.geiacenter.org/ (où sont disponibles toutes les références).

Les cadastres d'émission que nous comparons ont pour principe commun de donner des valeurs de flux (en tonnes) moyennés par degrés carrés sur une année entière. On ne dispose donc pas de sources saisonnières. Fort heureusement, si l'émission des BC peut varier du simple au triple, en fraction de l'émission annuelle en Asie, des mois d'été au mois de Janvier [Streets et al., 2003], l'émission de BC à la mi-mars correspond à la moyenne annuelle. Cela signifie que les émissions réellement constatées le mois d'Avril sont peu inférieures à cette moyenne annuelle. Les émissions de SO_2 sont, pour leur part, beaucoup moins saisonnalisées, et les émissions de fin Avril sont très proche des émissions moyennes annuelles.

Nous n'entrerons pas dans une bibliographie exhaustive des tests de validités réalisés par les auteurs pour accréditer leurs bases de données. Nous invitons pour cela à se reporter aux références complètes directement proposées dans les sites électroniques ci-dessus. Nous devons cependant signaler – et sans vouloir dénigrer aucunement ces données de flux sans lesquelles nous serions fort dépourvus - que tous les auteurs des bases de données reconnaissent de très importantes marges d'incertitudes dans les valeurs qu'ils proposent. Par exemple, la source STREETS de *Black Carbon* est, selon ses promoteurs, entachée des incertitudes suivantes: 484% pour la Chine et 83 % pour le Japon. En ce qui concerne le SO_2,

les incertitudes annoncées des flux d'émission de STREETS sont seulement de 13 % en Chine et de 9 % au Japon. Les limites déduites de ces pourcentages donnent les ordres de grandeurs des intervalles de confiance à 95 % autour de la valeur indiquée par le cadastre. Il faut ainsi comprendre que le flux annuel des émissions de BC issus de Chine est estimé par Streets et al [2003] à 1.05 Mt dans une fourchette de confiance comprise entre environ 17 % et 584 % de cette moyenne.

Pourquoi insister sur les incertitudes associées aux estimations des émissions ? Parce que nos premiers résultats de transports de polluants utilisant les sources de SO_2 et de BC les plus contemporaines, c'est-à-dire celles de STREETS, sources basées sur un recensement des émissions achevé en 2000, ont montré des écarts extrêmement élevés de concentrations de polluants par comparaison avec les ordres de grandeurs mesurés sur site, en particulier sur les grandes villes. Ce constat, après que nous ayons vérifié la validité de nos propres méthodes, nous a amené à rechercher si les sources EDGAR (pour le SO_2) et GEIA (pour les BC), plus anciennes car elles font référence à des bases de données antérieures à 1995, ne semblaient pas mieux estimer les ordres de grandeur des quantités de polluants émis.

Regardons en détail ce qu'il en est.

- Comparaison des cadastres d'émission de SO_2

Nous comparons donc les flux moyens d'émission en dioxyde de soufre lus sur les bases de données STREETS et EDGAR. Nous avons converti les données initialement en tonne/degré^2/an en unités SI ($kg.m^{-2}.s^{-1}$) puis nous avons projeté ces sources sur la zone de simulation de l'évènement d'Avril-Mai 2005. Le détail des projections stéréopolaires cartésiennes des sources initialement en latitude-longitude est donné, par exemple, dans Minvielle [2003].

Les *figures 4.7.a* et *4.7.b* présentent quelques isocontours de flux d'émission de SO_2, inclus dans, respectivement, le cadastre STREETS et le cadastre EDGAR.

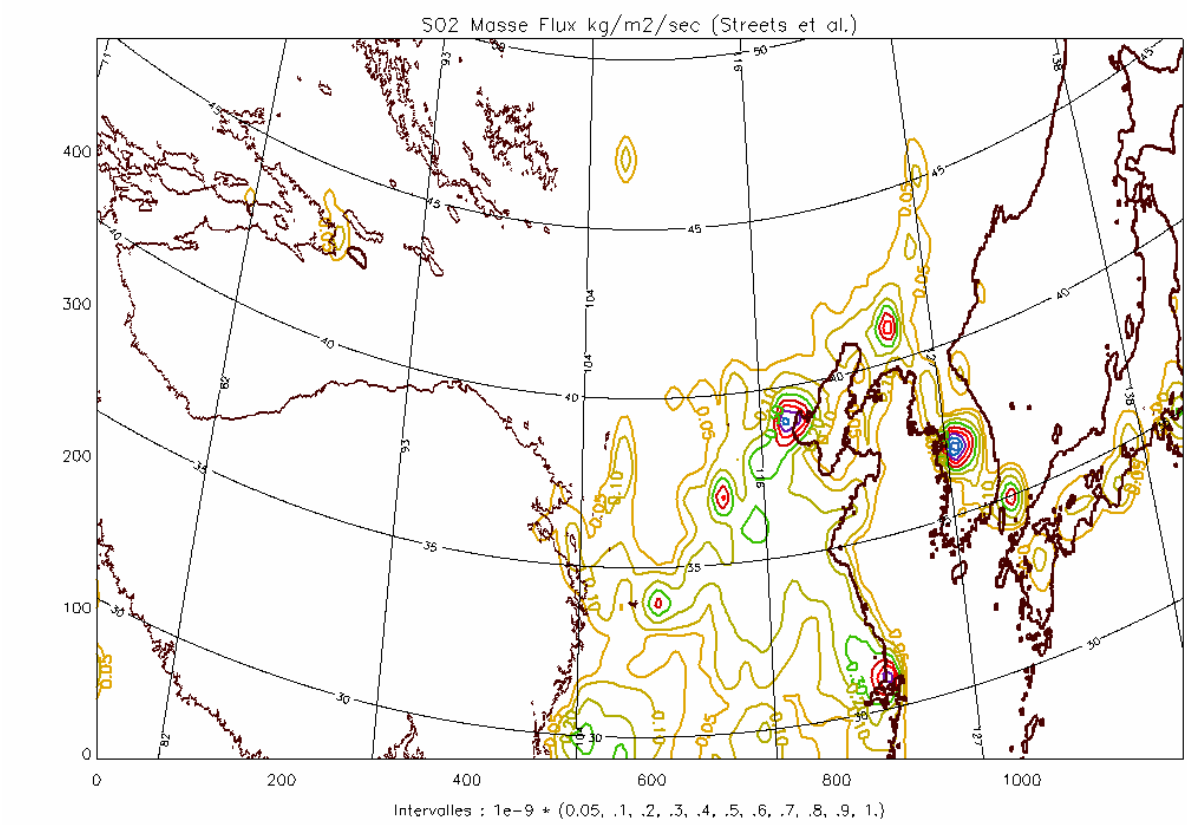


Figure 4.7.a – Isocontours des flux d'émission de SO_2 d'après la base de données STREETS. échelle des isocontours : de 0,05.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1} à 1.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1}

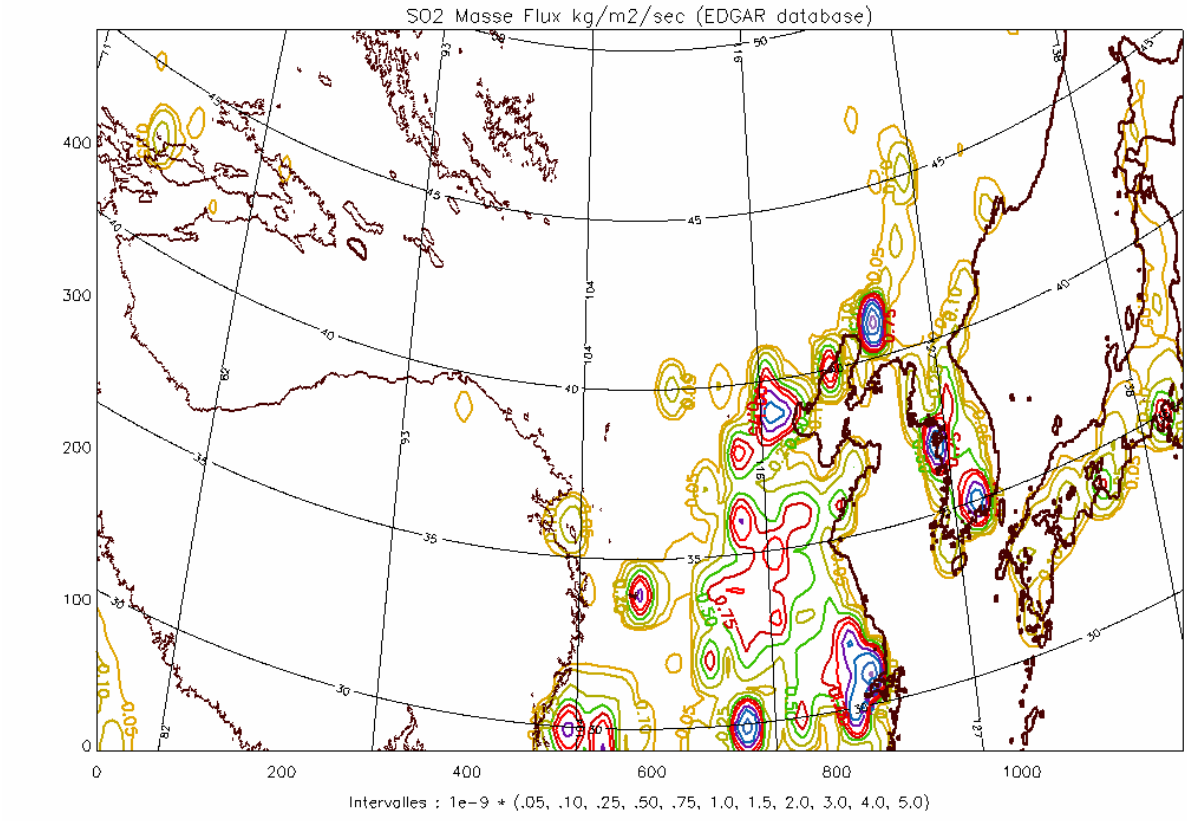


Figure 4.7.b – Isocontours des flux d'émission de SO_2 d'après la base de données EDGAR. unités échelle des isocontours : de 0,05.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1} à 5.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1}

On aura tôt fait de constater les plus fortes émissions de SO_2 proposées par la base de donnée EDGAR, notamment sur les villes du centre de la Chine (au Sud de la zone de projection) comme par exemple à Shanghai, sur la Mer de Chine. Un ensemble de métropoles incluses dans un rectangle (32N-37N ; 110E-118E) forme ainsi un « marais » d'émission de SO_2, de moyenne annuelle supérieure à $0.75.10^{-9}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$. Au Nord de la Chine, les deux cadastres d'émission proposent des flux d'intensités similaires localisés vers Beijing. En revanche, la région entre Dalian et Shenyang, au Nord de la Mer Bohai, région de forte activités de productions industrielles et énergétiques (mines, centrales), est estimée être environ dix fois plus émettrice de SO_2 par la base de données EDGAR que par la base STREETS. En Corée du Sud, Séoul est caractérisée par les deux sources comme étant une agglomération très émettrice de SO_2, tandis qu'au Sud du pays, le port industriel de Pusan émet environ dix fois plus selon la base EDGAR que selon la base STREETS (qui a, d'ailleurs, tendance à décaler ce point source dans la mer …).

La base STREETS, qui prend également en compte les émissions des liaisons maritimes, contient 20921 cellules émettrices parmi les 235×95 = 22325 cellules que compte la zone simulée (incluant les cellules en zones océaniques) soit un recouvrement de 93,7 % de la zone. La base EDGAR contient 17574 cellules émettrices ce qui représente 78,7 % de la zone de simulation.

Comparons maintenant les estimations des flux d'émission en commentant la *figure 4.8*.

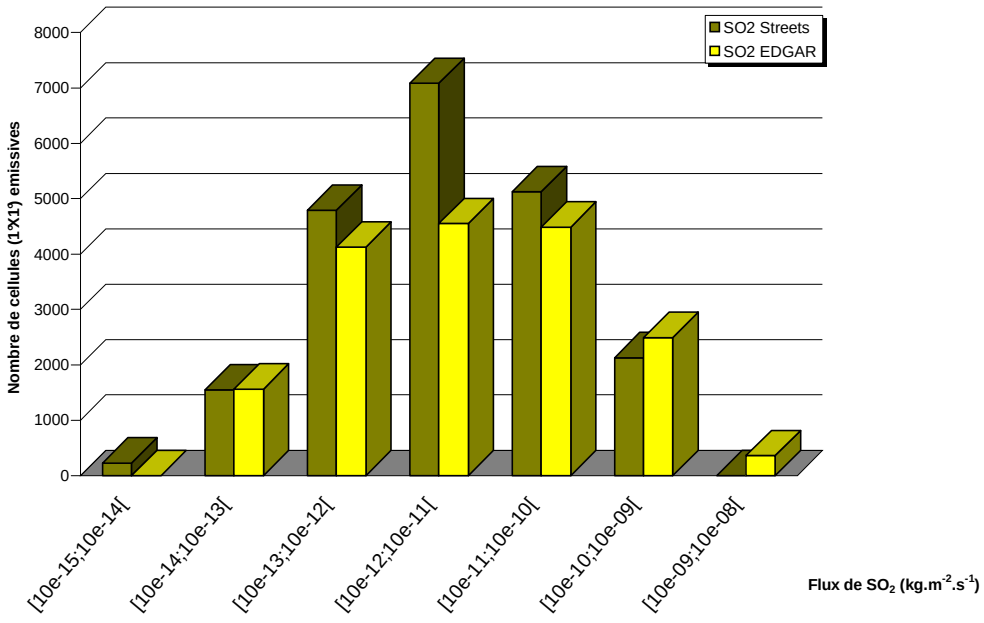


Figure 4.8 –Flux d'émission de SO_2 d'après les bases de données STREETS (kaki) et EDGAR (jaune) : nombre de cellules de 1°x1° par décade de flux annuel moyen.

On a représenté sur la *figure 4.8,* pour chacune des deux base de données et sous forme d'histogrammes mis en parallèles, les nombres de cellules de la zone simulée qui sont caractérisées par un flux d'émission annuel moyen dans tel ou tel intervalle de puissance de 10. On peut constater que la base EDGAR contient plus de cellules de flux supérieur à 10^{-10} $kg.m^{-2}.s^{-1}$ que n'en contient la base STREETS. Après projection sur le domaine simulé, le flux moyen est de $9.87.10^{-11}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$ pour la base EDGAR (écart-type : $\sigma = 2.94.10^{-10}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$) et $3.19.10^{-11}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$ pour la base STREETS ($\sigma = 7.05.10^{-11}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$). On constate donc que l'émission de la première est 3 fois plus intense que celle de la seconde.

On peut ainsi, à juste titre, se demander quelle base de donnée vaut-il finalement mieux utiliser dans le but de simuler les transports et les évolutions des polluants soufrés.

Dans son article *Reversal of the trend in global anthropogenic sulfure emissions*, Stern [2006] estime que les émissions anthropiques globales de soufre ont diminué de 22 % au cours des années 1990-2000. Cette décroissance serait établie de façon sûre pour l'Amérique du Nord et l'Europe et serait une tendance dessinée dans l'Est et le Sud Est Asiatique. Pour ce qui concerne la Chine, les émissions annuelles de Soufres anthropiques sont estimées selon les auteurs de cadastres à 9.52 Mt (Stern), 11.11 Mt (STREETS), 12.69 Mt (EDGAR) et 14.21 Mt (ASL: base de donnée établie par le département américain à l'énergie, [ASL and Associates, 1997]). Stern [2006] précise que sa propre estimation repose sur les statistiques officielles (SEPA) d'estimations des émissions. Il précise également que les valeurs de STREETS sont celles établies avec des données de SO_2 pour la période 1985-1997 [Streets et al., 2000] et que celles-ci apparaissent elles aussi proches des statistiques gouvernementales, car elles prennent en compte les technologies industrielles tendant à réduire les flux d'émission de polluants soufrés.

Ces assertions tendant à désigner les source STREETS comme devant être mieux à même de simuler les flux d'émission en SO_2 que la base EDGAR, nous laissent perplexes pour plusieurs raisons :

1. Afin de faire correspondre ses estimations avec celles de Streets [2000], Stern [2006] a admis une diminution annuelle de 3 % des émissions liée aux progrès technologiques affichés dans le domaine du contrôle des émissions de polluants. Il nous parait cependant délicat d'admettre comme incontestables les annonces officielles proposées par la Chine comme quoi la pollution y serait en voie d'être maîtrisée, voir réduite. Par exemple, bien qu'il ne s'agisse pas des SO_2 mais des NO_2 et d'ozone, rappelons pour notre part un fait d'actualité : en septembre 2005, l'Agence spatiale européenne (ESA) a diffusé une carte réalisée par le satellite

Envisat (http://www.esa.int/esaCP/SEMCZD7X9DE_France_0.html) montrant l'ampleur du plus gros panache de pollution en NO_2 « au monde » (dixit ESA) comme étant localisé au-dessus de Beijing et du Nord-Est de la Chine. Selon les données publiées par l'édition de septembre 2005 de la revue *Nature* [Cyranoski, 2005], la concentration atmosphérique de NO_2 de cette région a subi une augmentation de 50 % entre 1996 et 2004. Ce dernier auteur a d'ailleurs souligné que cette augmentation rapide ne correspondait pas aux statistiques officielles d'émission fournies par le gouvernement chinois.

2. La base de donnée STREETS, réactualisée par Carmichael et al [2002b], s'appuie sur l'inventaire RAINS-ASIA qui inclut les combustibles fossiles, la biomasse et, en théorie, les processus industriels. Mais Stern [2006] reconnaît que les données relatives aux processus industriels semblent (sic), en réalité, être absentes du cadastre proposé !
3. Stern [2006] effectue des prospectives après l'an 2000 et note que l'agence gouvernementale chinoise SEPA a annoncé un rebond des émissions de Soufre de plus d'une Mégatonne en 2003, soit une augmentation des flux supérieure à 12 % par rapport à ceux émis en 2002.

Pour d'une part ces raisons, qui nous amènent à émettre quelques réserves d'ordre méthodologique, et d'autre part le fait que les résultats de simulation des transports de SO_2 se soient révélés être bien mieux conformes aux observations en utilisant le base de donnée EDGAR, nous avons abandonné l'usage de la base de donnée STREETS au profit du cadastre de flux EDGAR, reconnu par Stern [2006] comme étant à la fois complet, détaillé et comprenant les sources principales d'émission de soufre.

- Comparaison des cadastres d'émission de BC

Nous comparons maintenant les flux moyens d'émission en Black Carbon proposés par les bases de donnée GEIA à, de nouveau, la base de donnée BC de STREETS.

A l'instar des comparaisons des sources de SO_2, on compare sur la *figure 4.9* les projections géographiques des flux d'émission de BC, à l'échelle de notre zone d'investigation.

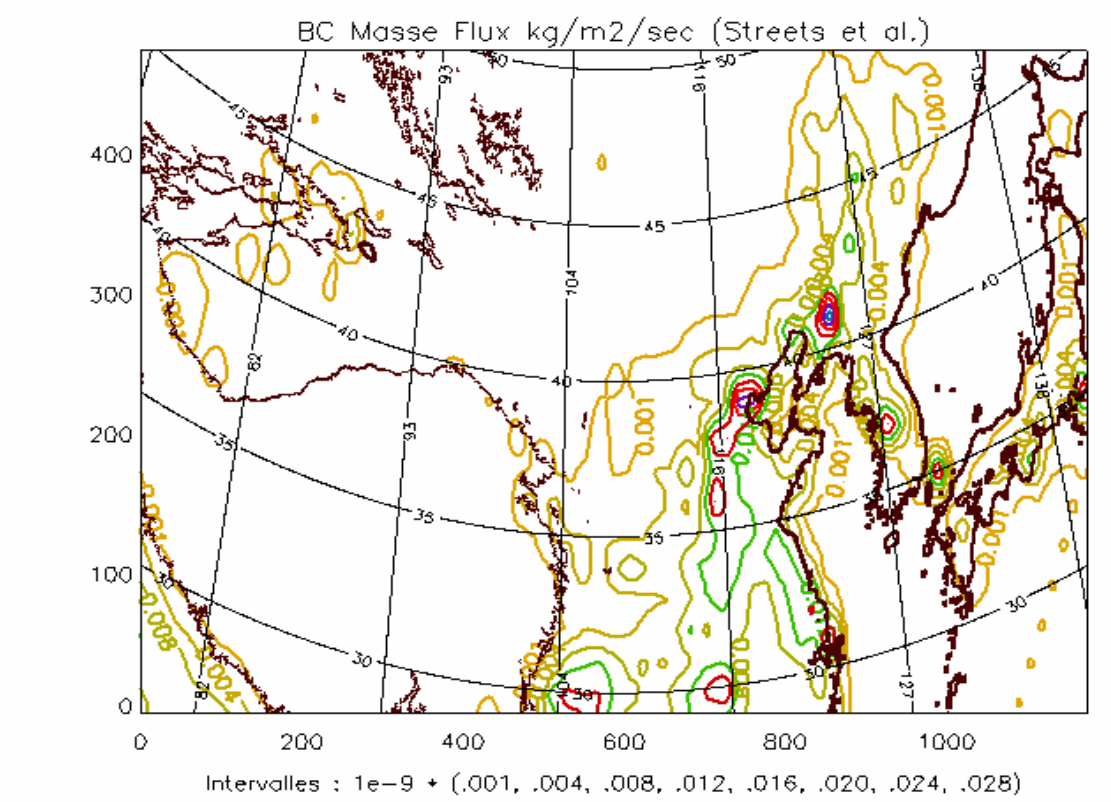


Figure 4.9.a – Isocontours des flux d'émission de BC d'après la base de données STREETS. échelle des isocontours : de 0,001.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1} à 0,028.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1}.

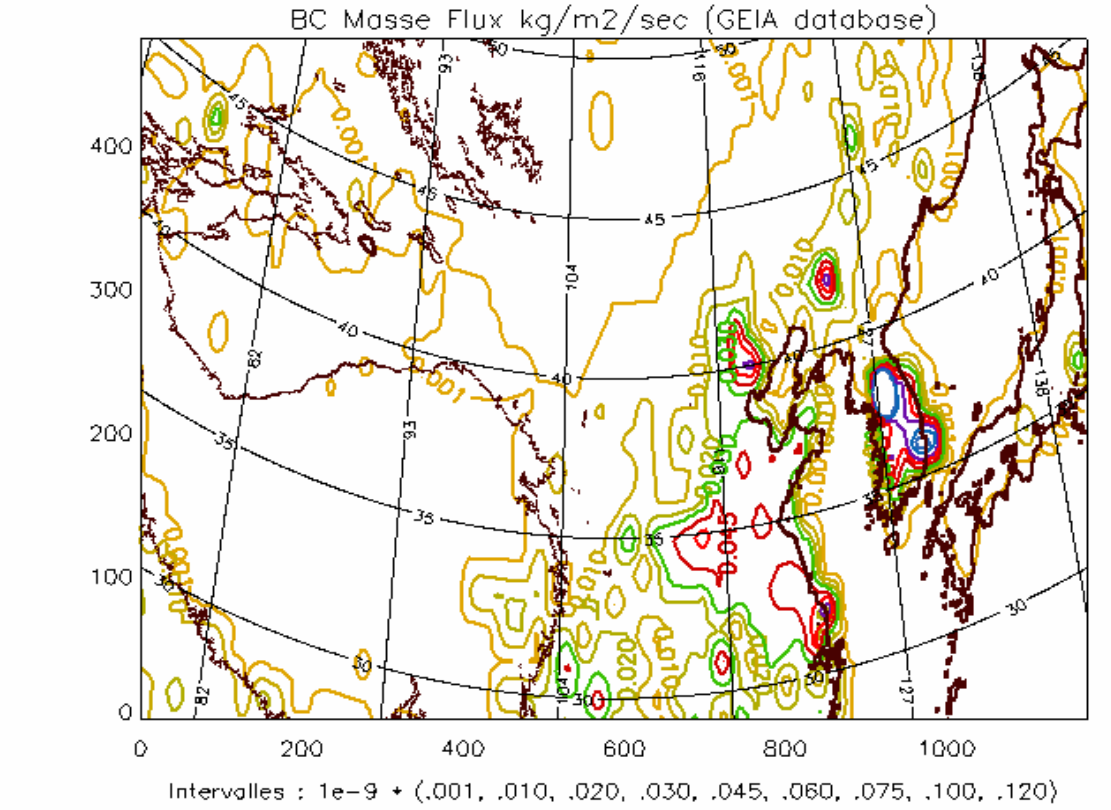


Figure 4.9.b – Isocontours des flux d'émission de BC d'après la base de données GEIA. unités échelle des isocontours : de 0,001.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1} à 0,120.10^{-9} kg.m^{-2}.s^{-1}

On retrouve sans surprise les zones d'émissions principales localisées, pour les deux cadastres, dans les mêmes aires géographiques, c'est à dire les principaux centres urbains et lieux d'activités industrielles, de productions minières et de productions d'énergie. Comme on va le constater sur la *figure 4.10*, ce sont les échelles des émissions qui distinguent un cadastre de l'autre.

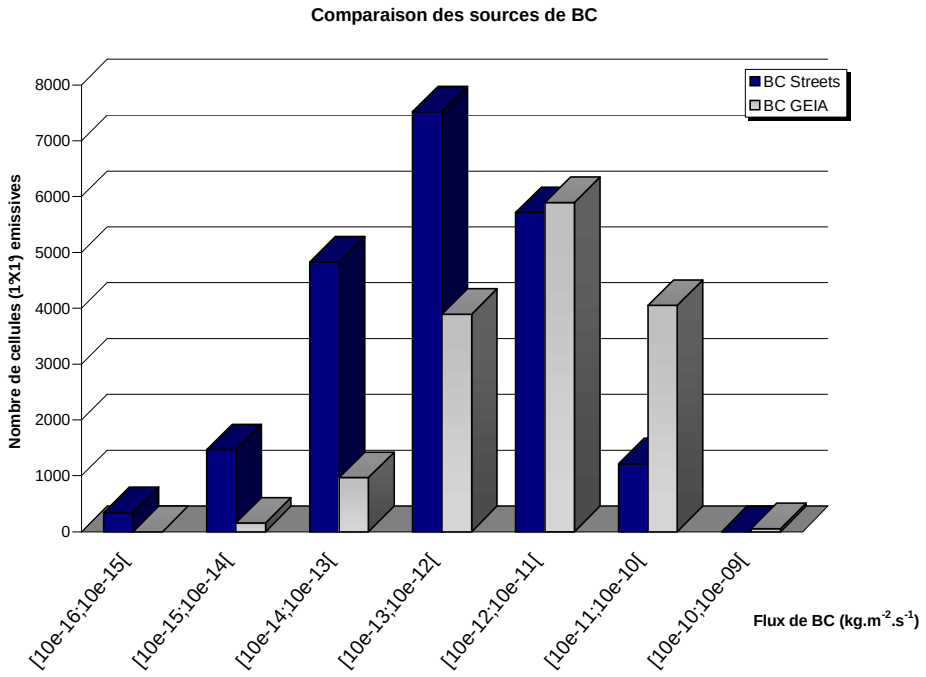


Figure 4.10 –Flux d'émission de BC d'après les bases de données STREETS (bleu) et GEIA (gris) : nombre de cellules de 1°x1° par décade de flux annuel moyen.

Ici encore, les flux de la base STREETS sont très inférieurs à ceux de l'autre cadastre considéré (GEIA). En effet, GEIA fournit une moyenne de $9.09.10^{-12}$ kg.m^{-2}.s^{-1} (écart-type σ = $1{,}67.10^{-11}$ kg.m^{-2}.s^{-1}), tandis que pour STREETS, le flux moyen est seulement de $1.99.10^{-12}$ kg.m^{-2}.s^{-1} (avec σ = $3{,}56.10^{-12}$ kg.m^{-2}.s^{-1}), soit un rapport de 4.6 .

Uno et al., [2003] ont modélisé la distribution des BC au printemps 2001 sur une zone géographique incluant la Chine, la Corée et le Japon, afin de retranscrire les transports de cette espèce de polluant tels qu'ils furent observés pendant la campagne ACE-ASia. Les auteurs ont couplé leur modèle chimique CFORS au modèle méso-échelle RAMS. Ils ont supposé que les BC existaient dans un mode unique (mode fin) et ont choisi d'ignorer tout processus de dépôt gravitationnel ou humide ainsi que tout processus de transformations

chimiques. Ils ont tenu simplement compte d'un dépôt turbulent en surface. Nous avons suivi les mêmes hypothèses dans le présent travail. Uno et al. ont attribué une vitesse de dépôt turbulent des BC à la surface de la terre de 1.10^{-3} ms^{-1} et de 1.10^{-4} $m.s^{-1}$ à la surface des océans. Rappelons que nous attribuons, pour notre part, une vitesse de dépôt turbulent unique valant 2.10^{-3} ms^{-1}. L'inventaire des émissions de BC utilisé dans les modélisations de Uno et al. [2003] fut celui de Streets et al., [2003]. Les résultats des champs horizontaux et verticaux de BC montrent une bonne correspondance avec les ordres de grandeurs des mesures de concentrations volumiques réalisées sur des îles autour du Japon où les concentrations expérimentales sont faibles, typiquement comprises entre 0 et 2 $\mu g.m^{-3}$. En parallèle, sur la Chine continentale, pour les mois de Mars et Avril 2001, les champs horizontaux de concentration de surface simulés par Uno et al., en employant la base de donnée STREETS, ne dépassent pas 3 $\mu g.m^{-3}$, ce qui semble notablement inférieur aux ordres de grandeurs des mesures in situ (§ 4.1.1.b).

Carmichael et al. [2003] ont suggéré qu'une sous-estimation des combustions de charbon à usages domestiques pouvait expliquer la réalité des concentrations élevées en CO, BC et SO_2 observées pendant l'expérience TRACE-P de mesures aéroportées sur la Mer de Chine. Reprenant les propres commentaires et réserves de Streets [2003], Wang et al.[2004] pensent aussi qu'il est tout à fait possible que les évaluations récentes des combustions domestiques de charbon en Chine soient sous-estimées dans les statistiques officielles chinoises.

Nos simulations de transports de BC avaient d'abord employé la source récente STREETS, mais nous avons constaté à notre tour une sous-estimation sévère des concentrations de BC sur l'agglomération de Beijing. Au vu de ces sous-estimations et des considérations critiques ci-dessus, nous nous sommes résolus à, finalement, adopter l'inventaire GEIA des émissions de BC bien que ce cadastre soit basé sur des statistiques plus anciennes que celles de la base de donnée STREETS.

4.2 Simulation des transports des aérosols minéraux et de polluants anthropiques: BC et composés soufrés, au printemps 2005

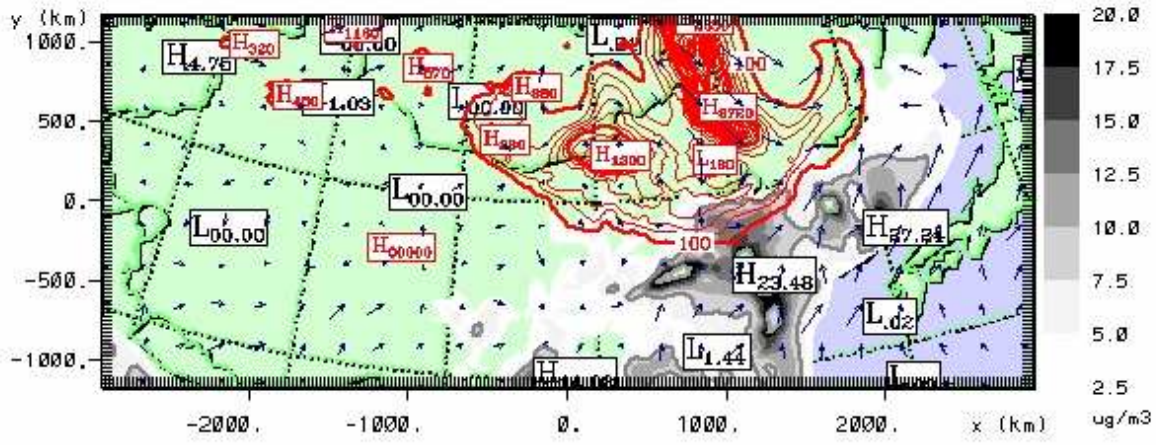
Nous présentons maintenant une étude des résultats de modélisations de transports et des évolutions de concentrations des trois espèces chimiques considérées. Nous analysons la répartition géographique des panaches des polluants acides et carbonés, pour la période du 27 Avril au 2 Mai 2005.

4.2.1 - Champs horizontaux de concentrations d'aérosols minéraux et d'aérosols de pollution anthropique, et examen critique des valeurs modélisées.

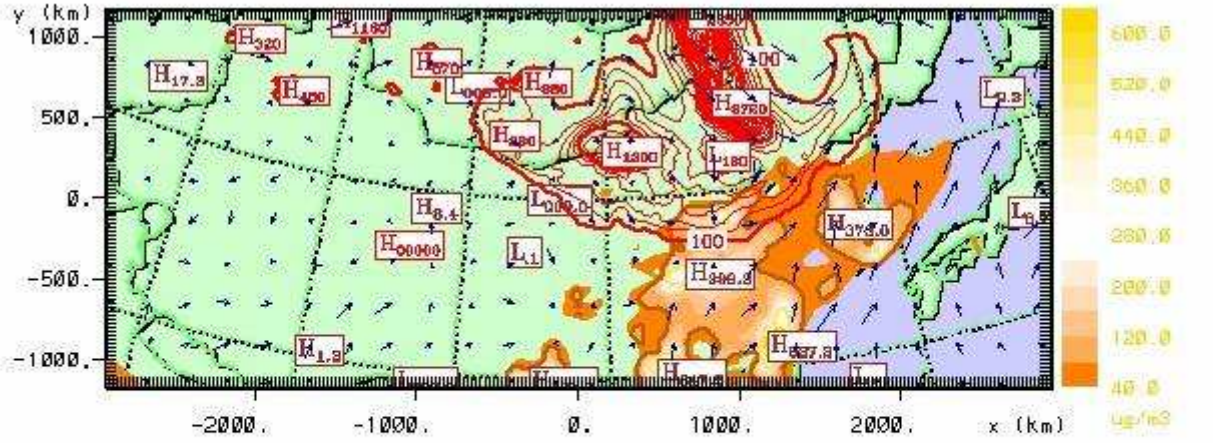
Nous rappelons que le manque de mesures systématiques en polluants nous impose de comparer nos résultats à des valeurs issues de notre étude bibliographique.

Nous allons d'abord examiner comment les champs d'aérosols de pollution s'organisent dans le plan horizontal, au niveau de la surface du sol et des océans, en présence des poussières minérales. Les figures *4.11.a* à *4.11.e* donnent un aperçu de l'évolution des panaches respectifs à des intervalles de 24 heures, en matinées locales des 28, 29 et 30 Avril ainsi que les 1 et 2 Mai. On rappelle que les heures en temps universel (TU ou UTC en anglais) peuvent êtres converties en heures locales (TL) en Chine (région de Beijing) selon le principe : TL = TU + 8h.

Sur nos simulations, les polluants anthropiques sont localisés, au niveau du sol, dans un arc de pollution contenant un vaste domaine à la fois continental et côtier, s'incurvant depuis la région de Shanghai au Sud jusqu'aux Corée, en passant par Beijing. Ce système pollué reste confiné essentiellement dans la partie Sud-Est de la simulation jusqu'au 30 Avril à 00 TU. L'arrivée d'un panache de transports de BC et de SO_2 est remarquée le 29 Avril en fin de journée (non montré). Durant les journées des 1 et 2 Mai, des concentrations de SO_2 supérieures à 40 $\mu g.m^{-3}$ sont calculées sur la Mer de Chine Orientale et les îles Sud du Japon (Kyushu et Shikoku). Dans le même temps, le panache de BC s'est aussi transporté en direction du Japon, où des concentrations supérieures à 2 $\mu g.m^{-3}$ concernent presque l'intégralité du Sud et du centre du territoire.



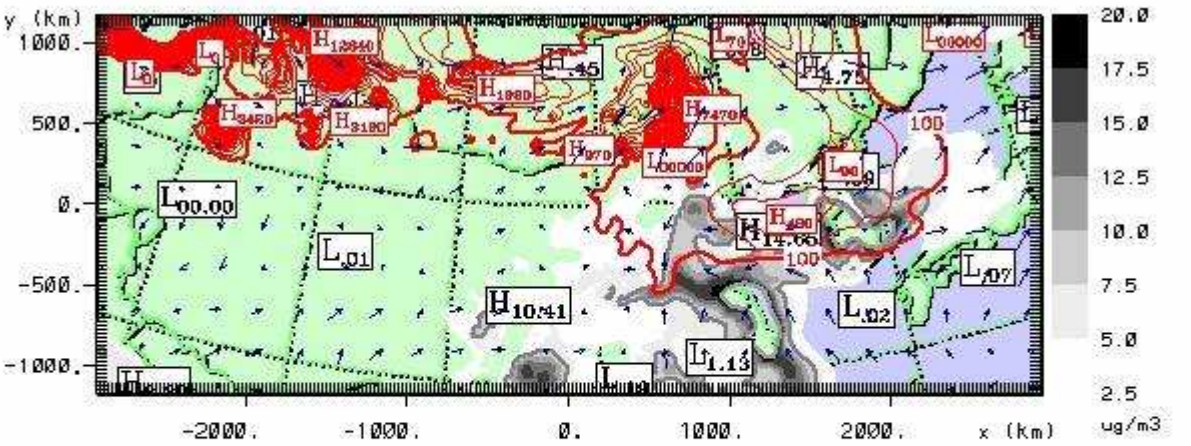
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-28-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	27.24	2.500	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	9729.	150.0	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.3801E-01	17.31		



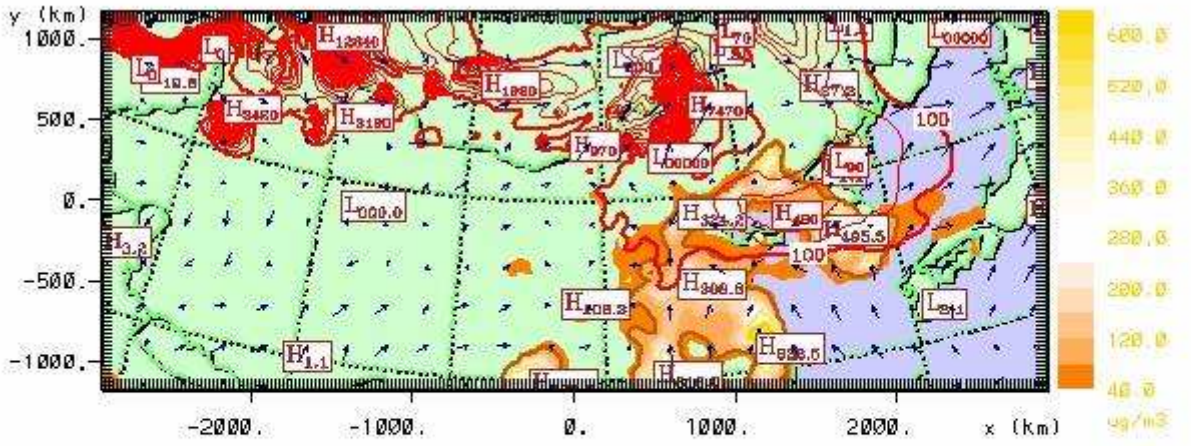
Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-28-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	647.6	40.00	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	9729.	150.0	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.3801E-01	17.31		

Figure 4.11.a – Champs horizontaux, au sol, des concentrations volumiques en BC (fig. haut, CONC_BC, nuances de gris et labels noirs) et SO_2 (CONC_SO2, fig. bas, nuances oranges si [SO2]<260 µg.m^{-3} et labels marrons). Sont représentés également les champs de concentrations en aérosol minéral (cmas, isocontours et labels rouges) et les vents de surface (flèches bleues).

Situation modélisée à 00 TU (08 TL) le 28 Avril 2005.

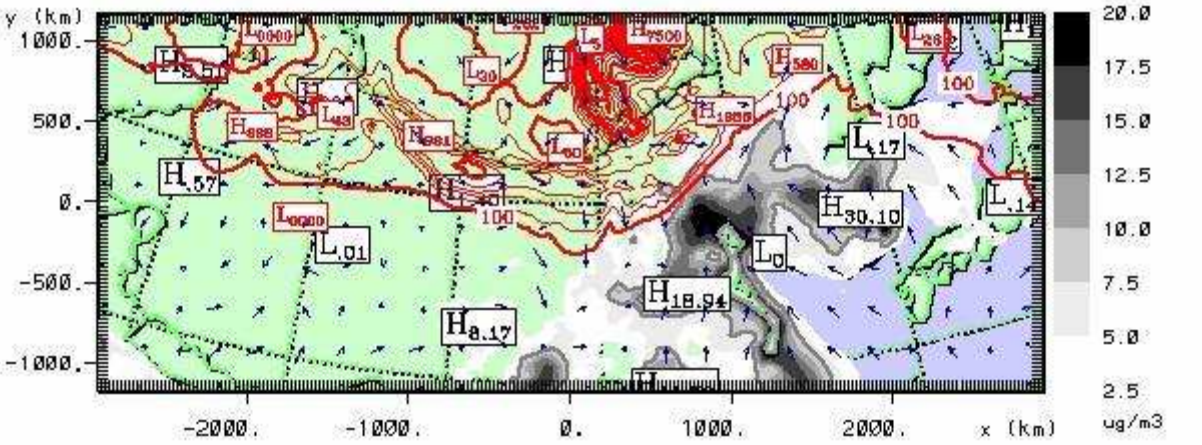


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2006-04-29-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	58.46	2.500	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	0.1284E+05	150.0	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.5145E-01	16.99		

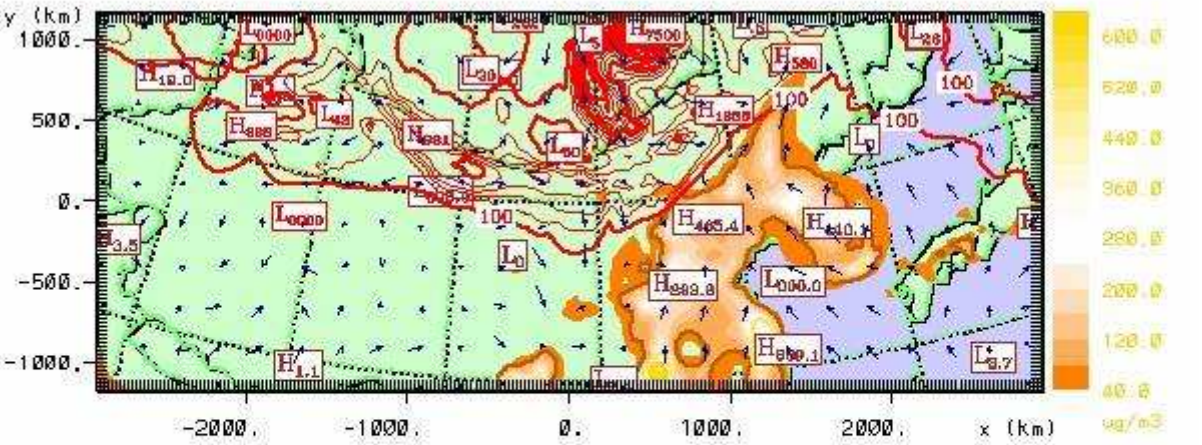


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2006-04-29-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	822.5	40.00	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	0.1284E+05	150.0	1e 0
vectors	2 m/s horiz	0.5145E-01	16.99		

Figure 4.11.b – Idem 4.11.a - Situation modélisée à 00 TU (08 TL) le 29 Avril 2005.

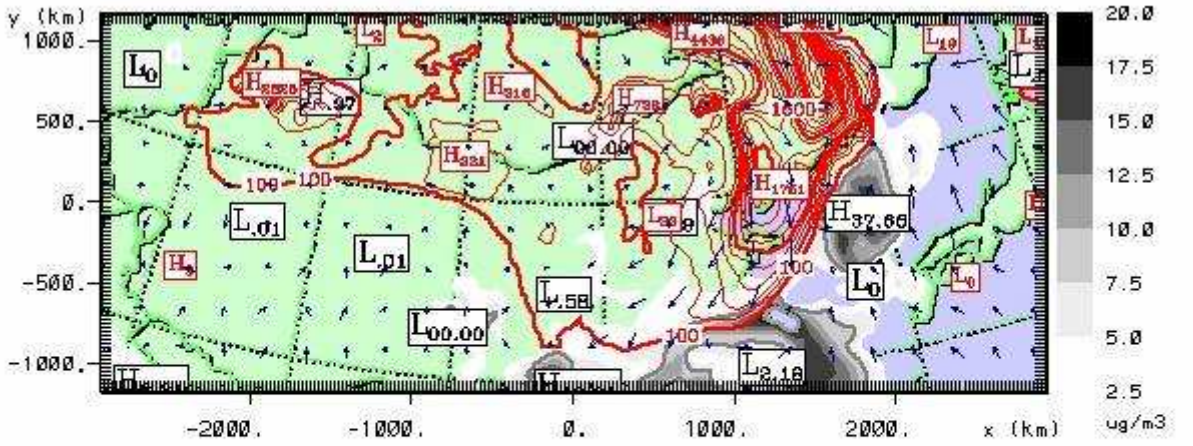


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-30-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	30.10	2.500	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	7500.	150.0	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.1914E-01	16.28		

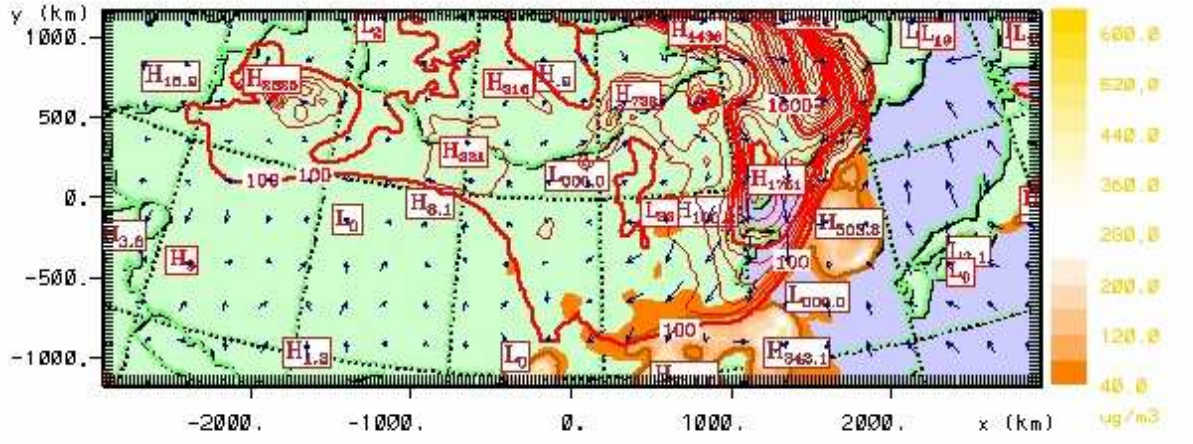


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-04-30-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	689.1	40.00	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	7500.	150.0	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.1914E-01	16.28		

Figure 4.11.c – Idem 4.11.a - Situation modélisée à 00 TU (08 TL) le 30 Avril 2005.

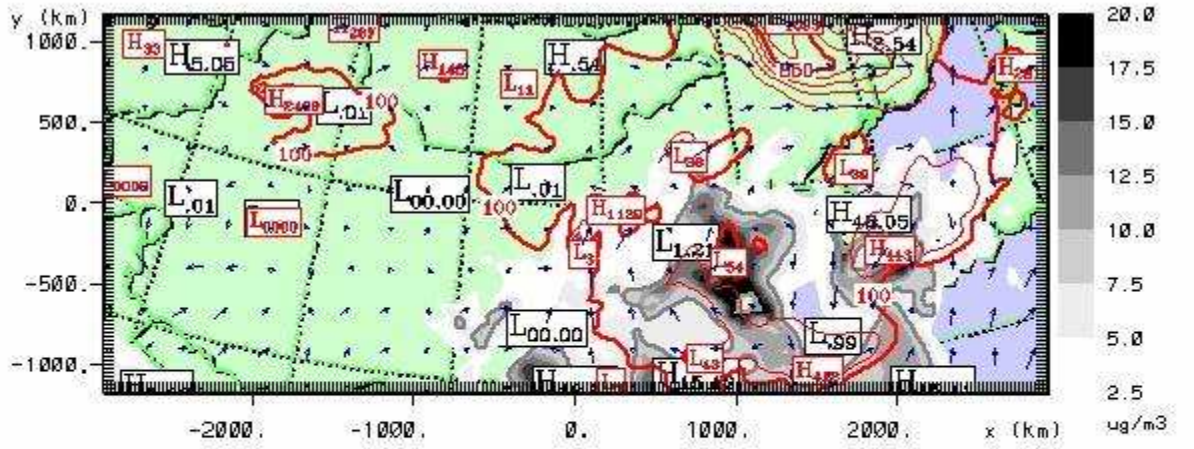


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-06-01-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	37.66	2.500	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	4436.	150.0	1e 0
vectors ▸	2 m/s horiz	0.2979E-01	20.50		

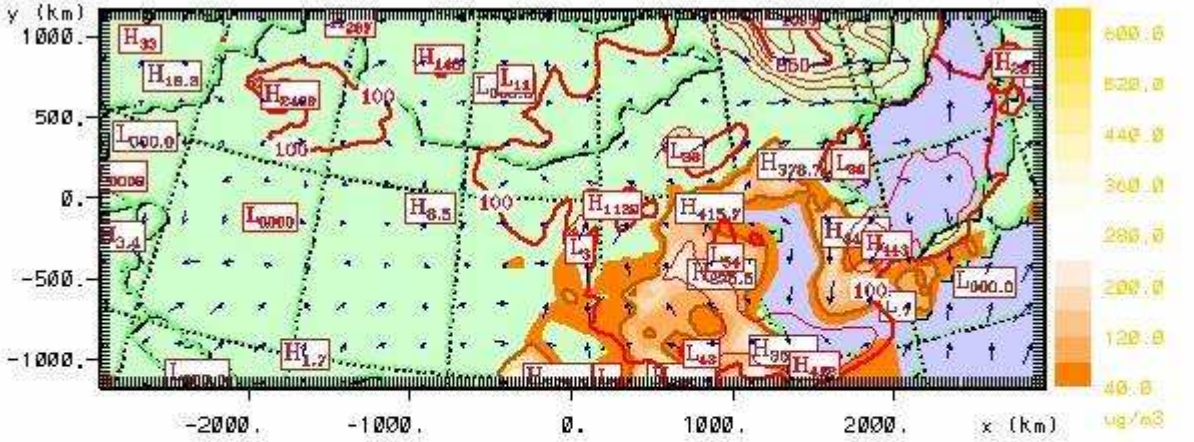


Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-06-01-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	711.0	40.00	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	4436.	150.0	1e 0
vectors ▸	2 m/s horiz	0.2979E-01	20.50		

Figure 4.11.d – Idem 4.11.a - Situation modélisée à 00 TU (08 TL) le 1 Mai 2005.



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-06-02-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	42.05	2.500	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	2409.	150.0	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.1367E-01	17.38		



Apr May 2005		grid 1			
z = 23.9 m	2005-06-02-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	689.7	40.00	1e 0
contours	cmas (ug/m3)	0.000	2409.	150.0	1e 0
vectors >	2 m/s horiz	0.1367E-01	17.38		

Figure 4.11.e – Idem 4.11.a - Situation modélisée à 00 TU (08 TL) le 2 Mai 2005.

On notera que les maxima de concentrations de dioxyde de soufre indiqués sur les quelques extraits présentés, sont extrêmement localisés géographiquement, le plus souvent sur la périphérie de Shanghai (Chine) et la région de Incheon - Séoul (Corée du Sud)) et ne représentent ni les valeurs moyennes ni les tendances les plus fréquemment observées ou obtenues par simulation. Les isosurfaces de concentrations montrent en effet que les «marais» de pollution les plus étendus contiennent des teneurs de pollution en SO_2 inférieures à 260 $\mu g.m^{-3}$.

Les BC présentent aussi quelques singularités locales, avec des concentrations de l'ordre de 40-50 $\mu g.m^{-3}$ au maximum. Ces valeurs sont tout à fait de l'ordre des maxima possibles, si l'on se rappelle les mesures mentionnées dans l'étude bibliographique ci-dessus. Par exemple, même en excluant certains pics dépassant les 500 $\mu g.m^{-3}$ au pont de Jianxiang à Beijing (lieu d'un intense trafic), les valeurs (hivernales) mesurées à cet endroit, du 26/01 au 02/02/00, s'échelonnent entre 10 et 70 ppb (soit approximativement 25 et 180 $\mu g.m^{-3}$) [Sun et al., 2006]. Autre exemple, à Lanzhou, centre urbain de 1,5 M d'habitants, très pollué, situé sur le fleuve Jaune, à la pointe Sud de la Mongolie intérieure et des déserts de Gobi, les concentrations en SO_2 sont très élevées. Les moyennes horaires mesurées pour le printemps fluctuent entre 30 et 140 $\mu g.m^{-3}$ [Ta et al., 2004].

Les champs de BC simulés sur des régions plus éloignées des mégalopoles présentent des concentrations comprises entre quelques unités et 15-20 $\mu g.m^{-3}$, valeurs elles aussi cohérentes avec les ordres de grandeurs attendus par rapport à la bibliographie.

Les champs de concentration de poussières minérales modélisées en surface sont aussi rappelés sur les *figures 4.11* afin, d'une part, d'observer la distinction très nette, et sans surprise, des régions sources de poussières d'avec les zones sources de polluants, et, d'autre part, d'illustrer les effets des dynamiques synoptiques et des modes d'injections propres aux deux types d'aérosols. L'influence des vents calculés par RAMS apparaît nettement dans les transports constatés.

Alors que les polluants anthropiques sont injectés dans l'atmosphère indépendamment des vents présents, les poussières sont générées via le DPM alimenté par ces vents. Il s'ensuit une présence de polluants anthropique permanente, alors que celle des poussières est intermittente, fondamentalement sporadique. Les transports des différents aérosols ne sont pas non plus contrôlés de la même façon, en dehors du dépôt turbulent qui est un facteur commun aux puits des différentes espèces. Les vitesses de chute propres aux 20 classes de taille d'aérosol minéral commandent la dynamique de «disparition sèche» des poussières, alors que

les polluants BC et composés soufrés subissent des puits climatologiques (et chimique pour le SO_2) indépendamment de leur transport réel.

A l'examen de ces figures, il semble que les mélanges entre polluants minéraux et anthropiques soient peu marqués, ou, plus exactement, que les zones où ces mélanges se produisent, soient assez réduites. En effet, les polluants anthropiques sont présents dans les domaines géographiques Est et Sud-Est, alors que les poussières minérales sont évidemment présentes plus au centre et au Nord et Nord Est de la zone simulée. Nous ne représentons franchement un mélange des aérosols qu'à la fin de l'événement (le 2 Mai), alors que les transports calculés jusqu'au 1 Mai laissent penser que les vents associés au front de poussières de surface « poussent» devant eux les polluants anthropiques déjà présents dans l'atmosphère. Nous allons approfondir ce point mais nous rappelons que, lorsque les masses d'air riches en aérosols désertiques séjournent au-dessus de régions émettrices de polluants anthropiques, ces masses d'air sont réapprovisionnées en permanence en polluants anthropiques depuis la surface, selon les flux constants prescrits localement. On peut imaginer, si le front de poussière a suivi un front froid, et comme les masses d'air préfrontales chargées en BC et composés soufrés ont suivi un flux de Sud certainement plus chaud, qu'un brassage vertical des aérosols puisse se produire.

Quoi qu'il en soit, cette ségrégation entre types d'aérosols (désertiques/anthropiques) est un fait avéré par les mesures. Les panaches de poussières désertiques sont séparés des panaches de pollution anthropique par l'avancée du front froid initiateur de la tempête de sable. Les études récentes de particules minérales collectées, à Qingdao, au Sud de Beijing, ville qui fut exposée aux passages de 3 tempêtes de sable au printemps 2001, ont révélé que leurs compositions montraient rarement des indices de pollutions anthropiques [Zhang, 2003c]. Le décalage de temps, que nous constatons dans ce travail, entre les transports de poussières et les transports de polluants, induit par les ségrégations météorologiques et dynamiques, témoigne dans le même sens que de précédentes mesures et modélisations méso-échelles concernant le Japon [Bates et al., 2004]. Ces simulations ont montré de surcroît qu'il n'apparaissait pas de comportement atmosphérique systématiquement commun aux différentes espèces de polluants elles-mêmes, même si elles sont émises d'une même région et bien que la plupart (sulfates, nitrates et espèces carbonées) dérivent de processus de combustion [Matsumoto et al., 2003]. Les diverses espèces semblent transportées, en effet, suivant des panaches non nécessairement confondus. Cela est évident pour les minéraux comparés aux anthropiques. Pour les polluants anthropiques, cela peut s'expliquer par de légères différences initiales des sites d'émission. Ces contrastes de comportements sont

encore accentués si l'on répartit les aérosols et gaz suivant leurs tailles et/ou leur affinités chimiques.

Nous présentons sur la *figure 4.12* la simulation, au niveau de la surface, des concentrations volumiques ($\mu g.m^{-3}$) en ions sulfates avec les concentrations massiques en eau condensée. On constate dès le 29 Avril une extension géographique importante des ions sulfates sur l'ensemble du domaine marin et côtier. Ceci est en accord avec les travaux de Matsumoto et al., [2003] qui ont constaté que les pollutions par les nss-SO_4^{2-} précédaient souvent les autres polluants anthropiques et qu'elles pouvaient être suivies par des particules minérales ayant absorbé des nitrates. Les auteurs ont mesuré la concentration moyenne des sulfates anthropiques sur l'Ile de Rishiri, au Nord du Japon, à environ 2.5 $\mu g.m^{-3}$ au printemps, avec éventuellement des valeurs bien supérieures en cas de brusques poussées de masses d'air polluées venues du continent. Nous situons donc nos calculs dans le haut de la fourchette de valeurs possibles (on peut en effet lire des isocontours de 5 $\mu g.m^{-3}$ vers le Nord du Japon). Cette remarque est aussi valable sur la zone continentale où nous trouvons des maxima de concentrations vers Shanghai et Séoul sans doutes surestimés (70-80 $\mu g.m^{-3}$) mais avec un gradient très marqué dès qu'on s'éloigne de ces zones. On obtient alors des concentrations encore élevées mais inférieures à 30-40 $\mu g.m^{-3}$, plus conformes aux valeurs moyennes annuelles rapportées par Wang et al., [2006] (ref. citées), soit en substance 17.83 $\mu g.m^{-3}$ (Shanghai sur 2003-2005, avec une moyenne au printemps de 21.00 $\mu g.m^{-3}$), 43.68 $\mu g.m^{-3}$ (Guangzhou en 1993), 18.19 $\mu g.m^{-3}$ (Xiamen en 1993), 22.34 $\mu g.m^{-3}$ (Guiyang en 2003) et 11.70 $\mu g.m^{-3}$ (Dalian sur 1994-1995). Nous n'avons pas examiné en détail le rôle de l'eau condensée. Il est cependant certain que cette eau a joué un rôle dans la capture des polluants. Ce point devra être approfondi pour les études ultérieures, dès lors que l'on pourra disposer de données chimiques concernant les dépôts humides.

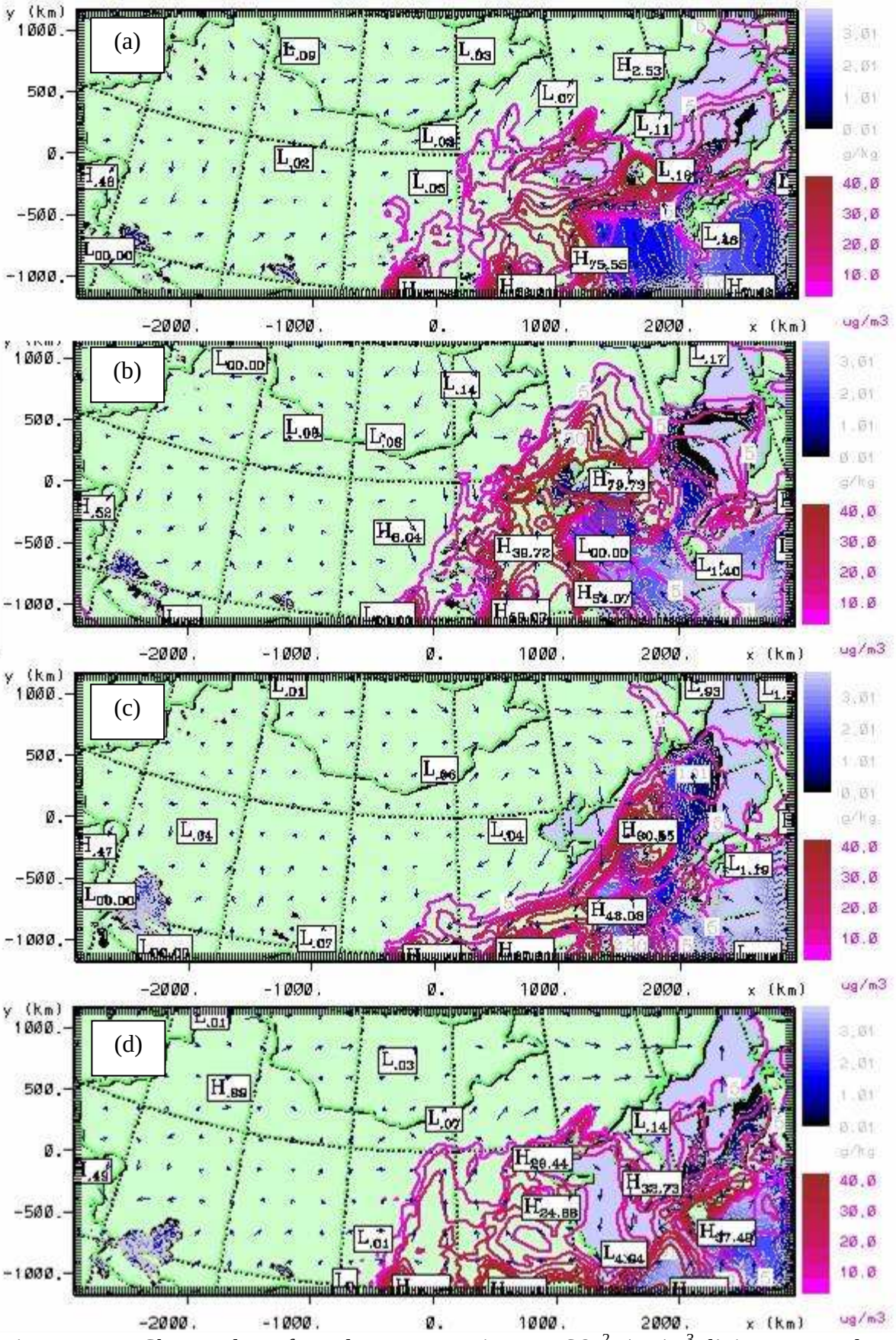


Figure 4.12 – Champs de surface des concentrations en SO_4^{2-} ($\mu g/m^3$ d'air, nuances de mauve et labels noirs) et en eau condensée (g/kg d'air, nuances bleues et labels gris). Situation modélisée à 00 TU (08 TL) les 29/04 (a), 30/04 (b) , 01/05(c) et 02/05/2005 (d).

En conclusion de notre simulation des transports horizontaux des 4 espèces de polluants prises en compte dans cette étude, nous montrons que les mélanges de panaches de poussières désertiques et d'atmosphères polluées en Asie de l'Est semblent suivre un processus spatialement inhomogène. Comme l'ont établies les mesures de Zhang et al., [2005] réalisées à Qingdao (Sud Est de Beijing) en Février et en Mars 2002, les poussières minérales provenant du Nord du pays semblent être confinées pendant plusieurs jours dans la masse d'air post-frontale alors que les polluants anthropiques sont retrouvés dans l'atmosphère de surface pré-frontale. Le mélange - minéral / polluants anthropiques - peut avoir lieu à l'interface de ces masses d'air ou de façon plus homogène quand les panaches diffusent finalement l'un dans l'autre, à l'image de ce que l'on observe le 2 Mai.

4.2.2 - Historiques par espèce chimique des concentrations simulées sur les villes de Hohhot, Beijing et Toyama.

Nous proposons dans ce paragraphe un descriptif détaillé des concentrations en polluants anthropiques BC, SO_2 et ions sulfates, à l'instar de ce que nous avons fait au chapitre 3, lors de l'analyse des résultats relatifs aux poussières désertiques exposés aux *figures 3.14*. Nous adoptons une présentation par type d'aérosol, déclinée pour chacun à Hohhot, Beijing et Toyama. Les figures *4.13*, *4.14* et *4.15* montrent les évolutions des concentrations au niveau du sol de ces trois villes pour, respectivement, les BC, SO_2 et SO_4^{2-} (rappelons que ce dernier représente l'aérosol sulfate, espèce en quoi nous avons supposé que le H_2SO_4 était finalement converti). On a reporté également sur ces figures, les charges colonnes respectives calculées aux zéniths des trois villes. Enfin, le *tableau 4.II* résume en quelques statistiques les valeurs représentatives de nos calculs pour les 5 journées entières simulées, du 27 Avril (00 TU) au 2 Mai (00 TU) 2005.

- Chronologie des concentrations de BC en surface et en charge colonne

On constate à Beijing une modulation des teneurs en BC (*fig. 4.13* ci-après) à l'échelle de la journée alors que les variations sur les deux autres villes ne présentent pas une telle variabilité quotidienne. Cette différence s'explique aisément par le fait que Beijing est un lieu d'émissions de BC alors que les deux autres villes ne le sont pas de façon aussi intense. On

peut supposer que le flux continu des BC sur Beijing est ensuite modulé suivant un cycle de 24 heures.

Les valeurs de concentrations en BC sont logiquement plus élevées à Beijing qu'à Hohhot et qu'à Toyama, mais de façon générale, il n'apparaît pas de corrélation de ville à ville entre les concentrations de BC calculées. Ces villes sont trop éloignées les unes des autres, et les transports éventuels de matières de l'une à l'autre trop soumis aux aléas météorologiques, pour que les valeurs obtenues en l'une puissent être associées directement à une autre.

On constate que les charges colonnes en BC (*fig. 4.13*) suivent une évolution contrôlée par la dynamique des transports, à l'inverse des concentrations au sol sujettes aux flux d'émissions locales. Ainsi, à Toyama les charges colonnes varient beaucoup plus rapidement que la concentration de surface, ce qui peut être la conséquence d'apports de polluants en altitude poussés par les vents orientés du continent vers la Mer du Japon. Bien évidemment, Beijing est moins sensible à cet effet de transports de BC à longues distances. On remarque ainsi que du 28 au 30 Avril en temps local, la pollution en BC n'a pas cessé de s'accumuler à la verticale de la ville, même si au niveau du sol les concentrations oscillaient avec des alternances journalières de maxima et de minima. Cette signature d'un apport de BC en altitude pourrait s'expliquer de façon logique comme étant en provenance des zones polluées du centre côtier du pays, au regard des vents soufflants sur la ville: en provenance du Sud-Est de 14TL le 28 à 04 TL le 29, passent momentanément en vents de Nord pendant 5 heures, puis se réorientant au Sud-Est pendant tout le reste de la journée locale (http://www.wunderground.com/history/station/54511/2005/4/30/DailyHistory.html) .

En fin de période simulée, on a calculé le 2 Mai au matin, une intrusion de pollution au BC sur Hohhot. Cela semble compatible avec les observations locales des vents, qui viennent de l'Est et du Sud Est (donc des zones polluées plus proches des côtes) à partir de 20 TL la veille au soir.

Le transport de BC sur Toyama calculé les 1 et 2 Mai est du à une pollution portée par les vents de Sud qui ont constamment soufflés sur la ville le 1 Mai, ceux-ci tournant au Nord le 2 Mai. (http://www.wunderground.com/history/airport/RJNT/2005/5/1/DailyHistory.html).

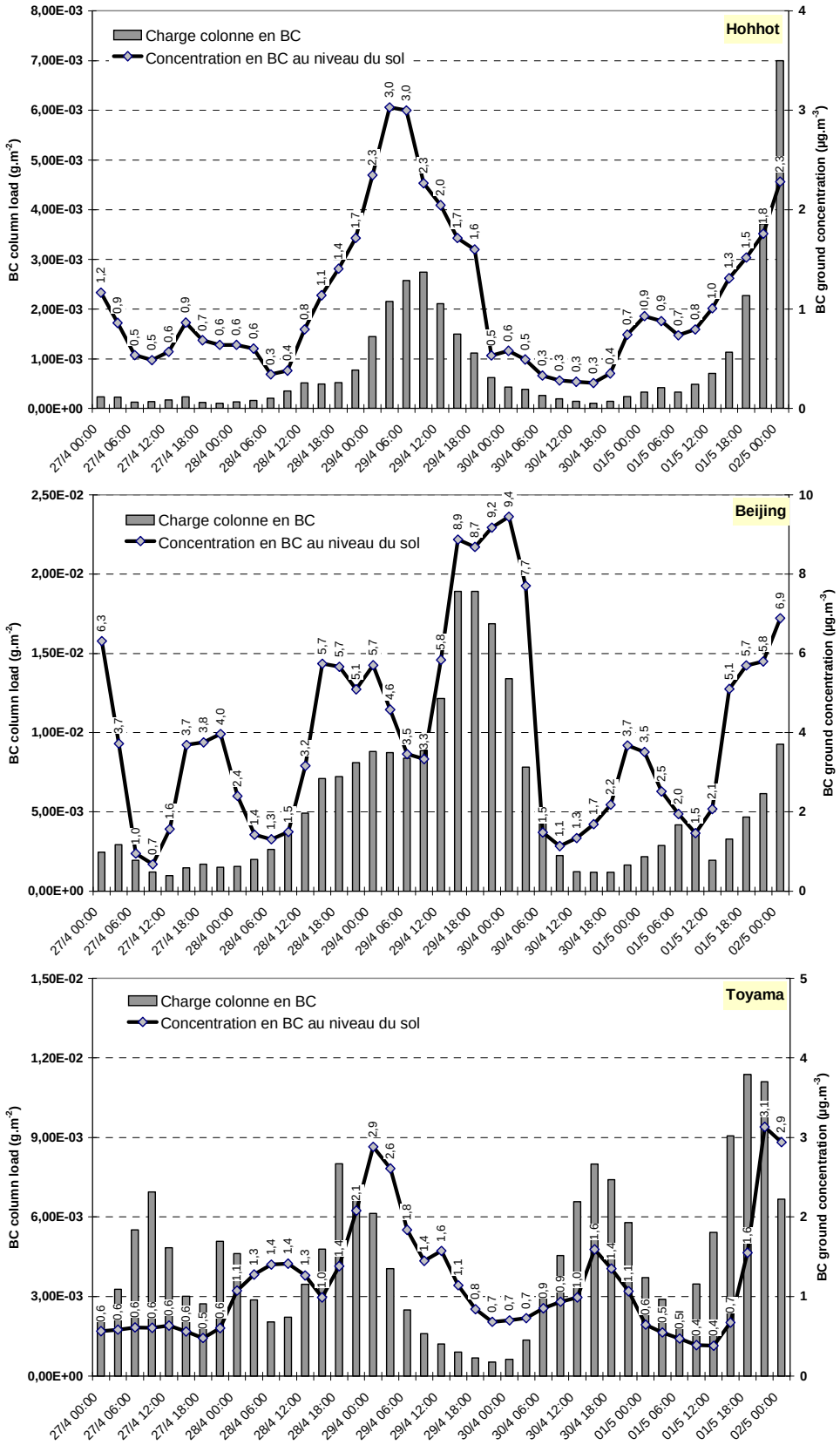


Figure 4.13 – Historiques des concentrations en surface ($\mu g.m^{-3}$: échelles spécifiques à chaque ville à droite de la figure) et des charges colonne ($g.m^{-2}$: échelles spécifiques à chaque ville à gauche de la figure) en Black Carbon, à Hohhot (haut), Beijing (médian) et Toyama (bas).

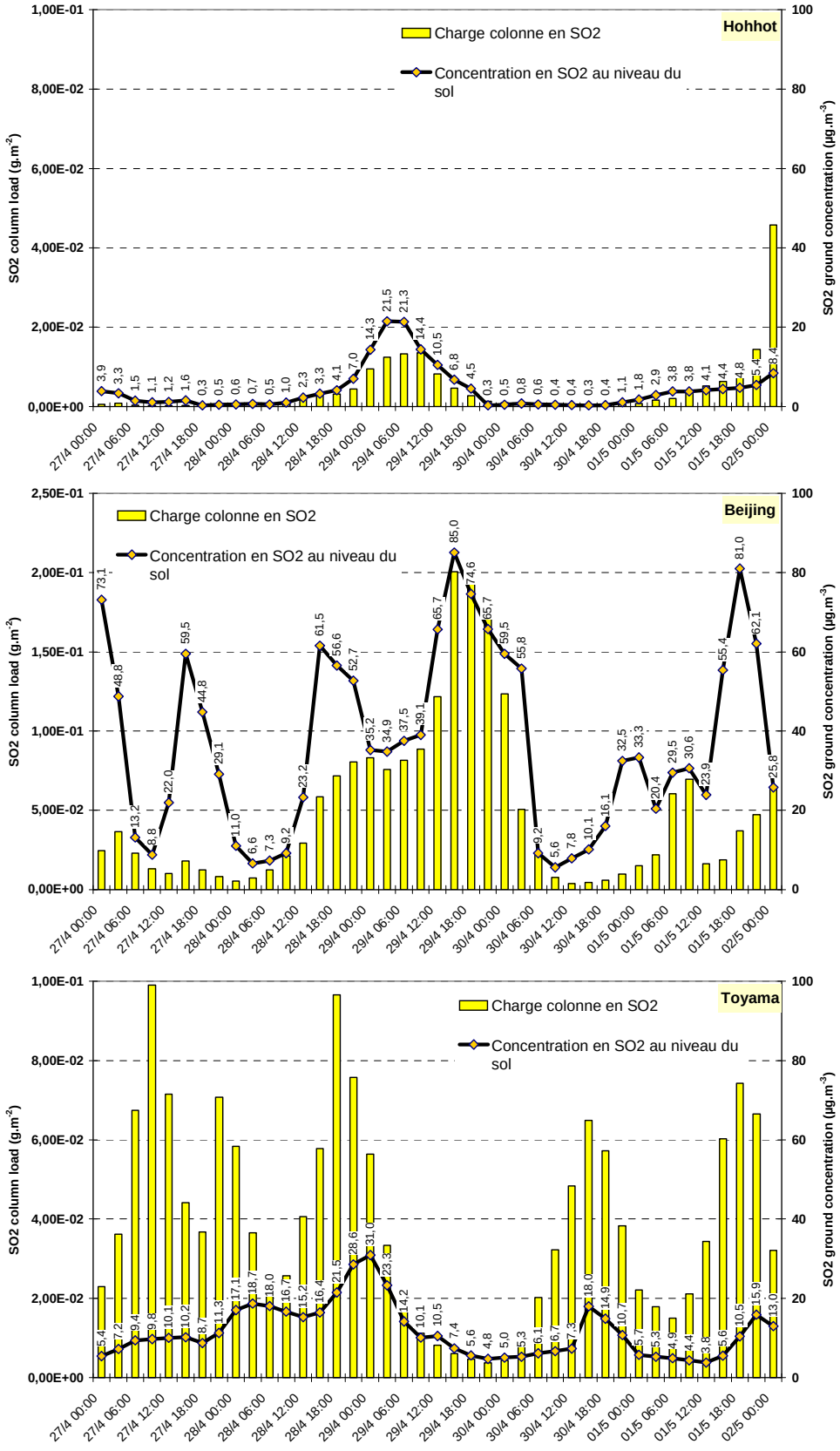


Figure 4.14 – Historiques des concentrations en surface ($\mu g.m^{-3}$: échelles spécifiques à chaque ville à droite de la figure) et des charges colonne ($g.m^{-2}$: échelles spécifiques à chaque ville à gauche de la figure) en Dioxyde de Soufre, à Hohhot (haut), Beijing (médian) et Toyama (bas).

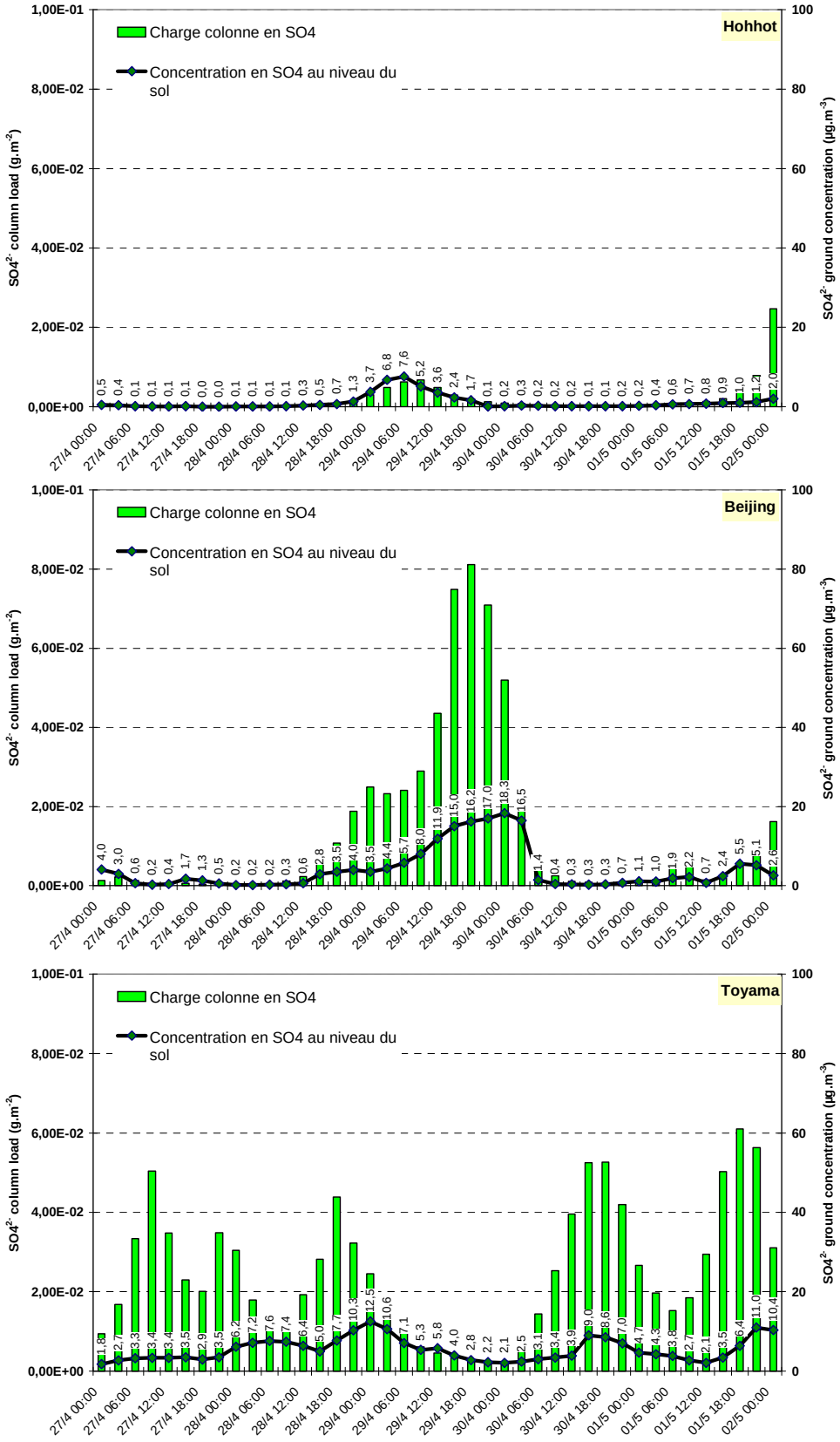


Figure 4.15 – Historiques des concentrations en surface ($\mu g.m^{-3}$: échelles spécifiques à chaque ville à droite de la figure) et des charges colonne ($g.m^{-2}$: échelles spécifiques à chaque ville à gauche de la figure) en Sulfates, à Hohhot (haut), Beijing (médian) et Toyama (bas).

- Chronologie des concentrations de SO_2 et de SO_4^{2-} en surface et en charge colonne.

Dans un premier temps, on remarquera (*fig. 4.14* ci-avant) que les concentrations de SO_2 suivent des variations très proches de celles des BC, quand on compare les deux types de polluants dans chacune des trois villes. Cela s'explique d'une part par le mode d'injection commun à ces deux polluants et d'autre part par l'évidente proximité géographique des zones d'émissions des deux types de polluants. Les quelques différences de courbes de concentrations au sol s'expliqueront donc essentiellement par des différences très locales de dynamiques atmosphériques tout au long de leur trajet (il n'y a pas proportionnalité exacte entre les flux de BC et ceux de SO_2 en chaque point source), ainsi que par le comportement chimique spécifique du SO_2.

Concernant plus spécifiquement les valeurs de SO_2, dont une vue globale est donnée, avec celle des autres espèces considérées, au *tableau 4.II* (voir plus loin), celles-ci apparaissent tout à fait pertinentes en Chine, à Beijing (§ bibliographie au 4.2.1) comme à Hohhot, où l'on n'oublie pas la présence d'usines. Pour poursuivre la bibliographie qui rapporte des ordres de grandeurs de SO_2 de plusieurs dizaines de $\mu g.m^{-3}$, citons Zhang et al [2005] qui ont, par exemple, mesuré les 20 et 21 Mars 2000 des concentrations en SO_2 comprises entre 35 et 70 ppb (environ 90 et 180 $\mu g.m^{-3}$) dans l'air pollué à l'avant du front d'une tempête de sable puis des valeurs en SO_2 comprises entre 10 et 60 ppb (environ 25 et 150 $\mu g.m^{-3}$) durant les 24 heures qui ont suivi le passage du front de ces poussières minérales. Il semblerait donc que la concentration de SO_2 ait un peu diminué (du moins le maximal) à l'occasion du passage de la tempête de sable. Ceci peut avoir deux causes: soit la masse d'air porteuse de minéraux désertiques est moins polluée en anthropiques et le mélange des masses est faible, soit une capture du SO_2 par ces mêmes minéraux désertiques s'est opérée. Dans la région rurale de Lin'an, à l'Ouest de Shanghai, la moyenne horaire (établie du 18/02/01 au 30/04/01) de la concentration s'établit à 15.9 ± 14.6 ppb [Wang et al., 2004] c'est-à-dire qu'à environ 200 km d'une mégalopole urbaine, sans être sous ses vents dominants, on peut mesurer des concentrations caractéristiques d'un air propre aussi bien que des pics de pollution aux environs de 80 $\mu g.m^{-3}$. Les moyennes quotidiennes (ce qui signifie l'existence de pics supérieurs à ces valeurs moyennes) mesurées au cœur de la ville de Beijing au mois d'Avril 2000 atteignent 60 $\mu g.m^{-3}$ en période peu empoussiérée et valent 19 -24 $\mu g.m^{-3}$ pendant deux arrivées de poussières désertiques. Enfin, cette fois à l'aide de modélisation, Tan et al. [2002] ont calculé au moyen de leur modèle régional, pour des conditions

météorologiques et saisonnières équivalentes, des pics de concentrations de surface de SO_2 en zones urbaines chinoises et coréennes supérieurs à 20 ppb, soit supérieures à quelques 50 $\mu g.m^{-3}$ et une concentration de 5 ppb (~ 12-14 $\mu g.m^{-3}$) en moyenne sur les zones rurales.

L'image satellite SCIAMACHY présentée sur la *figure 4.16* révèle la présence de dioxyde de Soufre au Sud de Beijing et sur la Mer Bohai le 29 Avril 2005, ce qui confirme notre calcul d'une charge colonne significative à cette date.

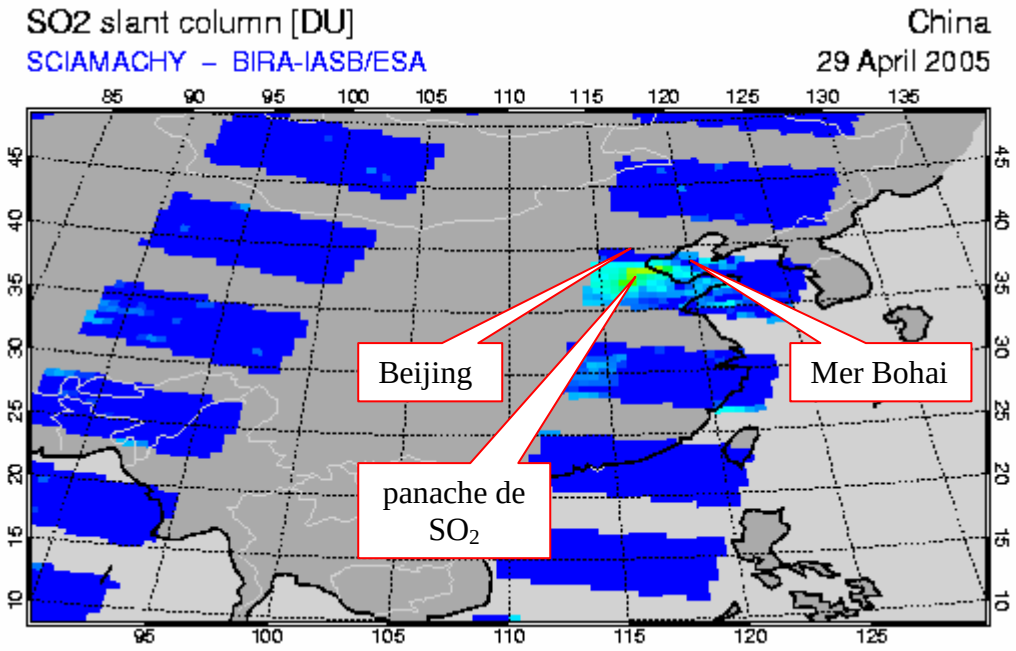


Figure 4.16 – Image SCIAMACHY du 29 Avril 2005 indiquant la présence de SO_2 au Sud de Beijing et sur la Mer Bohai.

La ville de Tianjin (117°E, 39°N) se situe à la pointe Ouest de la Mer Bohai et à environ 150 km au Sud-Est de Beijing. Sur le site http://www.tjemc.org.cn/ nous nous sommes procuré les valeurs des indices API spécifiquement relatifs aux concentrations en SO_2 et déterminés à Tianjin les 30 Avril et 1er Mai 2005. Le 30 Avril la prévision de SO_2 locale donne, après conversion en unités relatives au SO_2 une concentration de 111 $\mu g.m^{-3}$. Nous calculons, pour le 30 Avril, une moyenne (± écart-type) de concentration en SO_2 de 171 ± 137 $\mu g.m^{-3}$. Par les mêmes approches, l'indice API de valeur 55 déduit des mesures de SO_2 le 1 Mai correspond à 60 $\mu g.m^{-3}$. Notre modélisation calcule ce jour là une moyenne de 65 ± 43 $\mu g.m^{-3}$. Les valeurs que nous calculons pour ces deux journées à Tianjin semblent bien

refléter la réalité de la pollution locale. Signalons que, sur ce secteur géographique de la Mer Bohai, la concentration en SO_2 est très variable en une journée comme l'ont montré des mesures aériennes effectuées entre 400 et 800m d'altitude. Les concentrations, en ppb, y variaient entre 20 et 40, soit à peu près entre 50 et 100 $\mu g.m^{-3}$, le 19 mars 2002 en fin d'après midi [Hatakeyama et al., 2005].

Pour Toyama, il est plus difficile de valider les concentrations de surface en SO_2 ainsi que les charges colonnes calculées. Si, là encore, les valeurs estimées au sol sont dans la limite des observations rappelées par la bibliographie [Zazen et al., 2004], la variation quotidienne des charges colonnes doit simplement être interprétée comme le témoignage de transports de polluants à des altitudes supérieures. Ces afflux de pollution sont dans la réalité soumis à des conditions nuageuses et potentiellement précipitantes qui nous forcent à la prudence vis-à-vis de toute généralisation de nos valeurs, d'autant que nous ne disposons pas de mesures chimiques dans les précipitations. Nous proposons une approche plus détaillée de nos résultats dans un plan vertical aux paragraphes 4.4 et 4.5.

Les ions sulfates sont des polluants secondaires intégralement issus - dans notre simulation - de l'oxydation des SO_2. Les courbes des charges colonnes en SO_4^{2-} (*fig. 4.15*) sont, pour les trois villes, similaires des courbes de charges colonne de SO_2 (*fig. 4.14*) et représentent entre le tiers et la moitié de celles-ci indépendamment du lieu étudié.

L'examen des trois villes montre que, sur une zone très émettrice de polluants comme Beijing, la concentration en surface de SO_2 présente une modulation temporelle très marquée, alors que la courbe de concentration en sulfate est beaucoup plus lissée. Les quantités de SO_2 , injectées de façon constante à chaque pas de temps dans le premier niveau RAMS, ont davantage de devenirs possibles (transports, transformation chimique, captures, dépôts) que les sulfates qui n'en sont qu'une des évolutions possibles, ce qui pourrait expliquer très qualitativement cette différence d'évolution à court terme.

Les concentrations de surface sont de toute façon très dépendantes de la température et de l'humidité relative. Une humidité relative importante accélère dans les conditions réelles la conversion $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ qui suivrait sinon un processus sec (le seul envisagé par nous), comme le montrent Yao et al. [2003] sur Beijing. Il ressort de leur étude que la concentration en sulfate est supérieure en été à celle formée au printemps par suite de processus de conversion intra nuageux réalisés à des températures plus élevées. L'évaluation par Yao et al. [2003] d'une concentration estivale à 31.5 $\mu g.m^{-3}$ en sulfate secondaire nous fournit ainsi une limite haute de l'ordre de grandeur de concentrations en sulfates à Beijing pour ces dernières

années. Le 29 avril le temps était plutôt clair sur Beijing et l'humidité relative plutôt basse (35 % en moyenne), or nous simulons sur 24 heures une hausse de la teneur en sulfates de 4,0 à 17,0 $\mu g.m^{-3}$. Cette estimation, dans des conditions vraisemblablement favorables à une conversion sèche, entre dans le cadre des mesures de Yao et al.,[2003], ce qui conforte la crédibilité de nos résultats de concentrations en SO_4^{2-}.

	Hohhot				***Beijing***				***Toyama***			
	minéral	SO_2	SO_4^{2-}	BC	minéral	SO_2	SO_4^{2-}	BC	minéral	SO_2	SO_4^{2-}	BC
statistiques ($\mu g.m^{-3}$)												
moyenne	**235**	**4.15**	**1.09**	**1.07**	**188**	**37.2**	**4.05**	**4.00**	**32**	**11.6**	**5.38**	**1.16**
écart-type	**183**	**5.28**	**1.80**	**0.74**	**123**	**23.4**	**5.32**	**2.49**	**40**	**6.64**	**2.87**	**0.71**
minimum	13	0.31	0.02	0.26	59	5.58	0.15	0.68	0	3.81	1.80	0.38
maximum	715	21.5	7.64	3.03	618	85.0	18.30	9.45	145	31.0	12.5	3.13

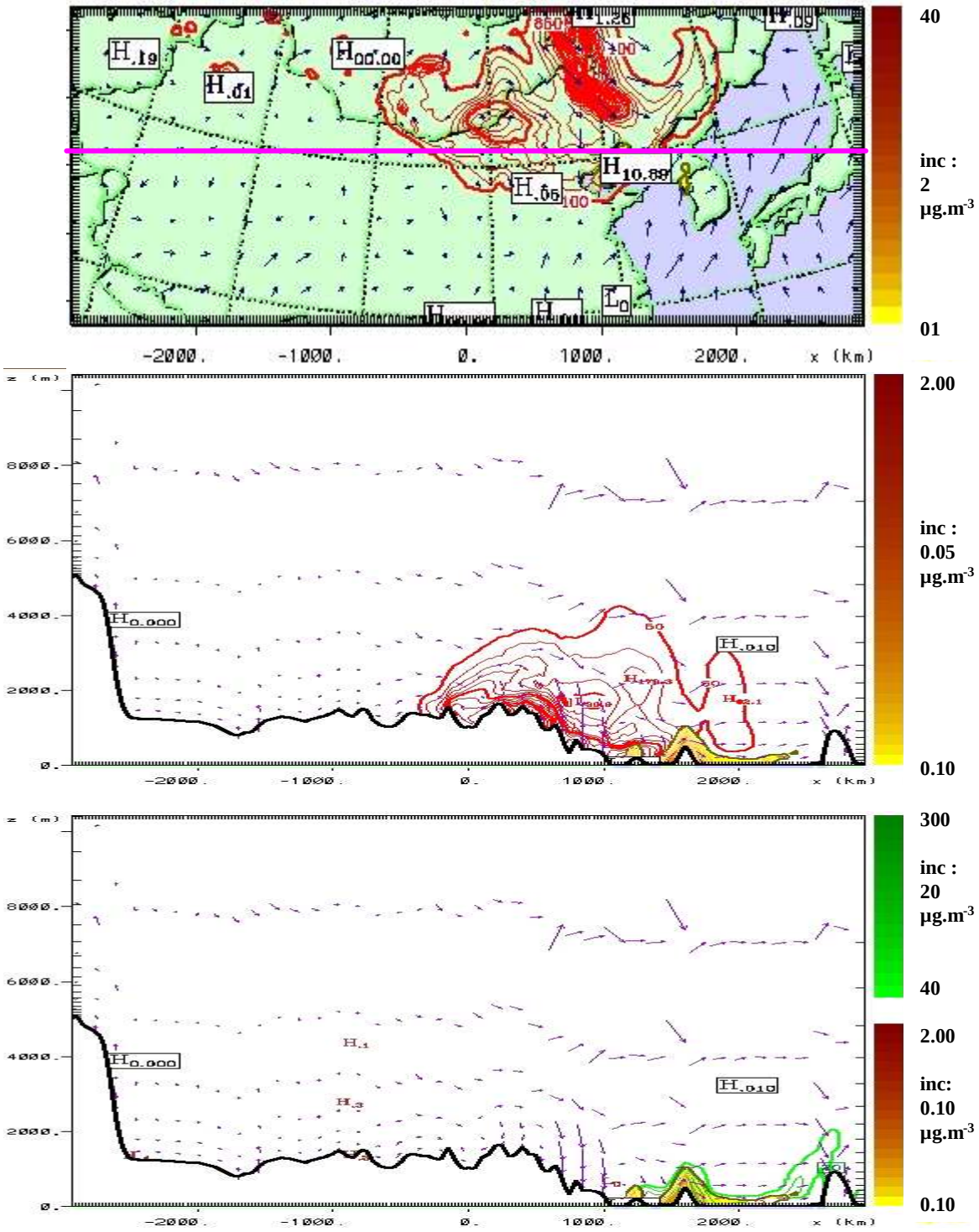
Tableau 4.II – Statistiques récapitulatives des concentrations en aérosols (en surface) calculées du 27 Avril 00TU au 02 Mai 00TU sur les villes de Hohhot, Beijing et Toyama.

4.3 La capture du SO_2 par les poussières minérales

La chimie de transformation des produits soufrés se trouve modifiée par la présence éventuelle d'aérosol minéral naturel. En guise d'illustration, signalons que, pendant la campagne de mesures ACE-Asia, Ma et al., [2004], ont établi à partir de mesures effectuées sur l'Ile de Cheju, au Sud de la Corée, qu'environ 21% du $CaCO_3$ présent dans les particules minérales désertiques étaient convertis en $CaSO_4$ par réaction chimique avec l'acide sulfurique H_2SO_4 pendant le transport du mélange des deux espèces. De même, les analyses physico-chimiques d'échantillons collectés à Qingdao en octobre 1996 ont indiqué que 3.3-12.2% de particules de poussière contenaient des ions sulfate (et 6,5-10,0% de nitrates) sur leur surface [Zhang, 2003].

Nous cherchons ici à rendre compte des captures de SO_2 gazeux par les particules minérales lorsque ces poussières sont transportées depuis leurs déserts d'origines jusqu'aux zones géographiques polluées par les émissions anthropiques. Le terme de «capture» se comprendra comme un mélange interne entre les deux espèces, incluant aussi bien les hypothèses d'une adsorption sèche qu'humide, ce dernier processus était certainement le plus probable. Il n'est pas envisagé de capture des BC ou des sulfates secondaires par ces mêmes particules minérales et nous rappelons que la conversion $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ n'est pas modélisée, mais peut être raisonnablement supposée, pour la fraction de SO_2 capturé par les poussières désertiques.

Nous présentons une vue d'ensemble de la simulation, en reprenant les résultats du 28 Avril au 2 Mai 2005, chacun à 00TU, c'est-à-dire en deuxième partie de matinée en temps local (*figures 4.17*). Notons que, en toute rigueur si l'on suit l'hypothèse d'une conversion en sulfate du SO_2 adsorbé, l'on devrait multiplier les concentrations en SO_2 adsorbé par le facteur 1.5 pour obtenir la concentration en sulfate mélangé aux aérosols minéraux.

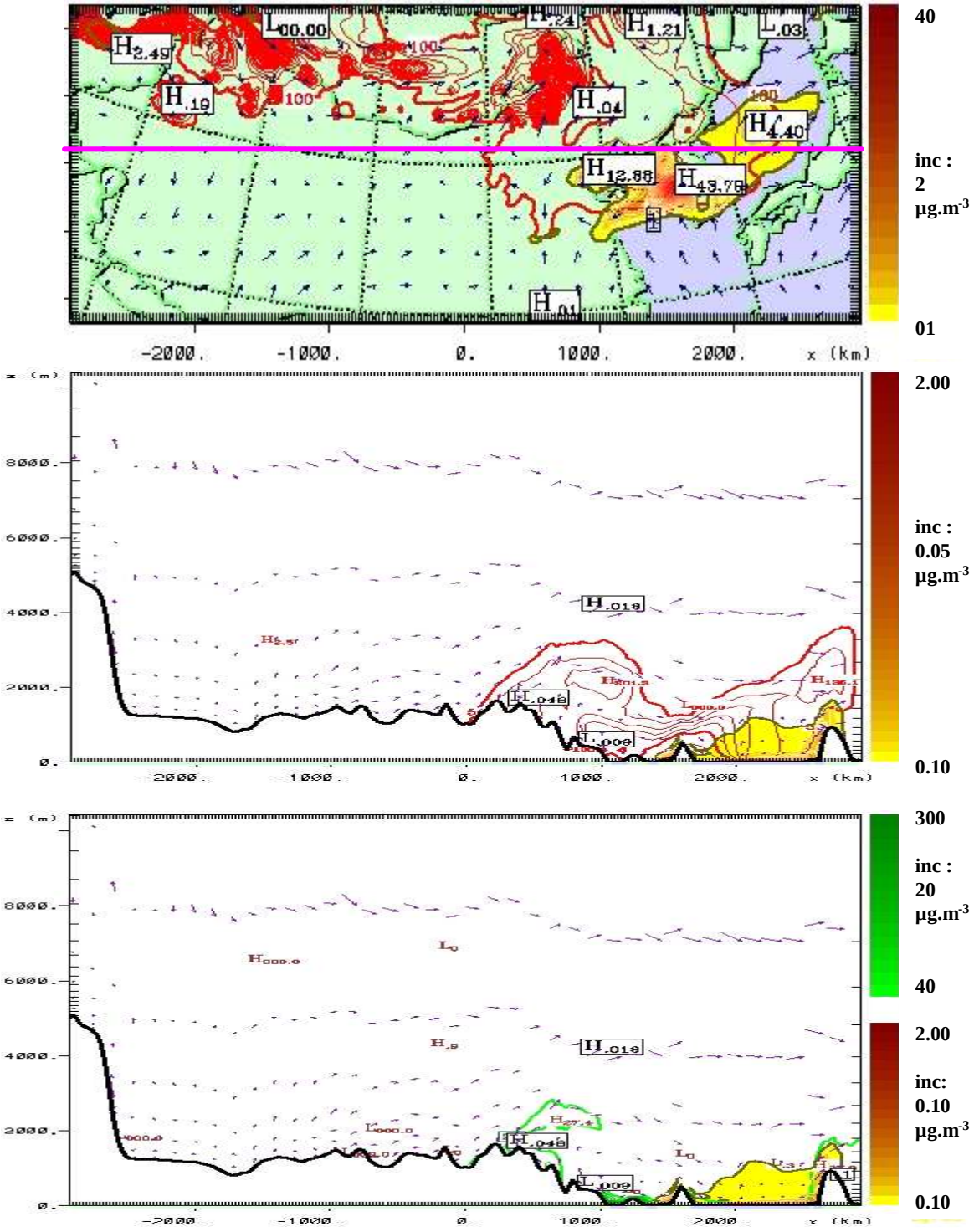


Figures 4.17.a – le 28 Avril 2005 à 00TU (08TL)

Haut: concentrations en aérosol minéral (isocontours rouges) et surfaces des concentrations de SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs).

Médian: profils de concentrations des mêmes espèces que la figure du haut, dans le plan de coupe vertical, en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer.

Bas: profils de concentrations SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs) et des concentrations en SO_2 "libre" (isocontours et labels verts, maximum: 102 µg.m^{-3}).

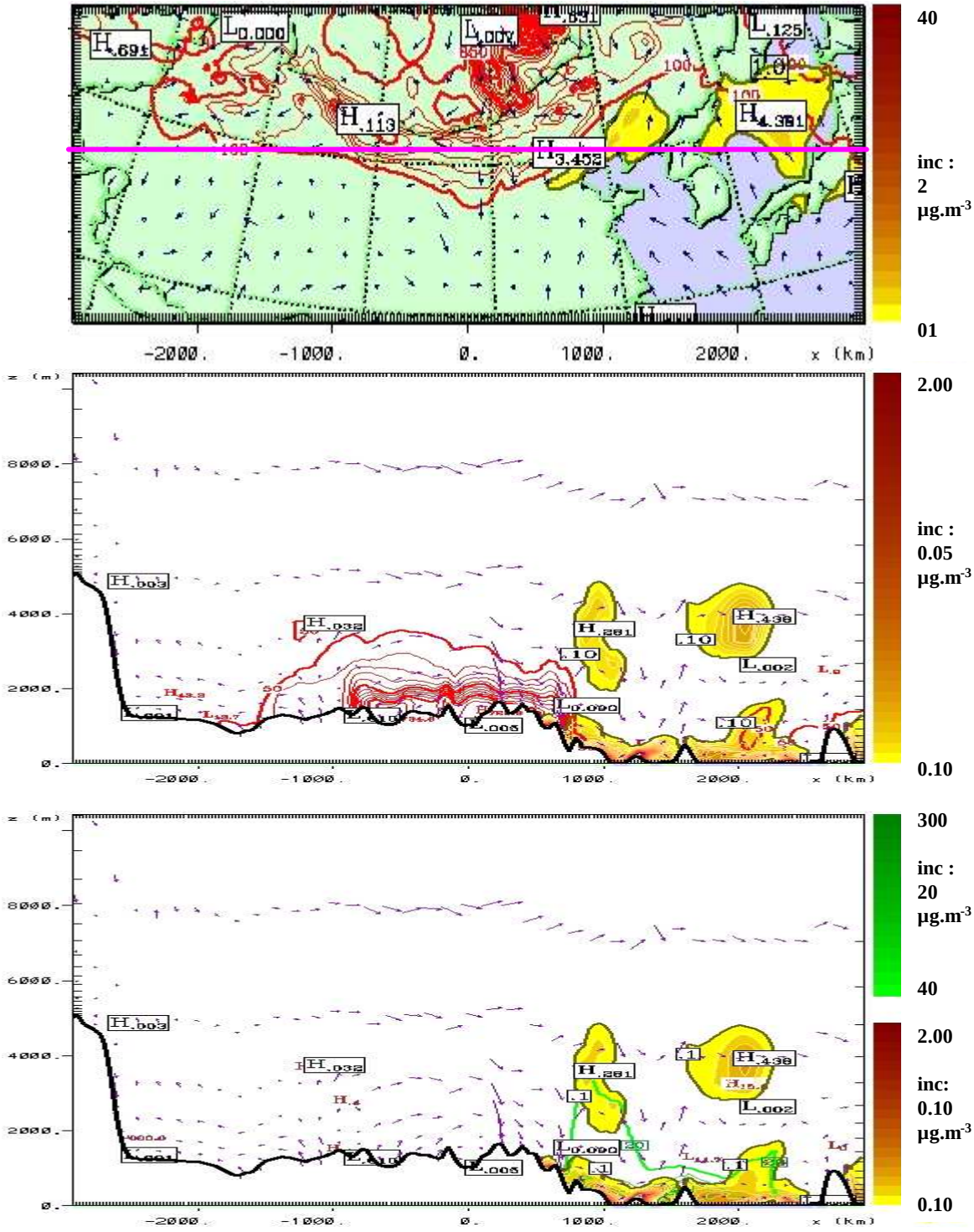


Figures 4.17.b – le 29 Avril 2005 à 00TU (08TL)

Haut: concentrations en aérosol minéral (isocontours rouges) et surfaces des concentrations de SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs).

Médian: profils de concentrations des mêmes espèces que la figure du haut, dans le plan de coupe vertical, en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer.

Bas: profils de concentrations SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs) et des concentrations en SO_2 "libre" (isocontours et labels verts, maximum: 230 µg.m^{-3}).

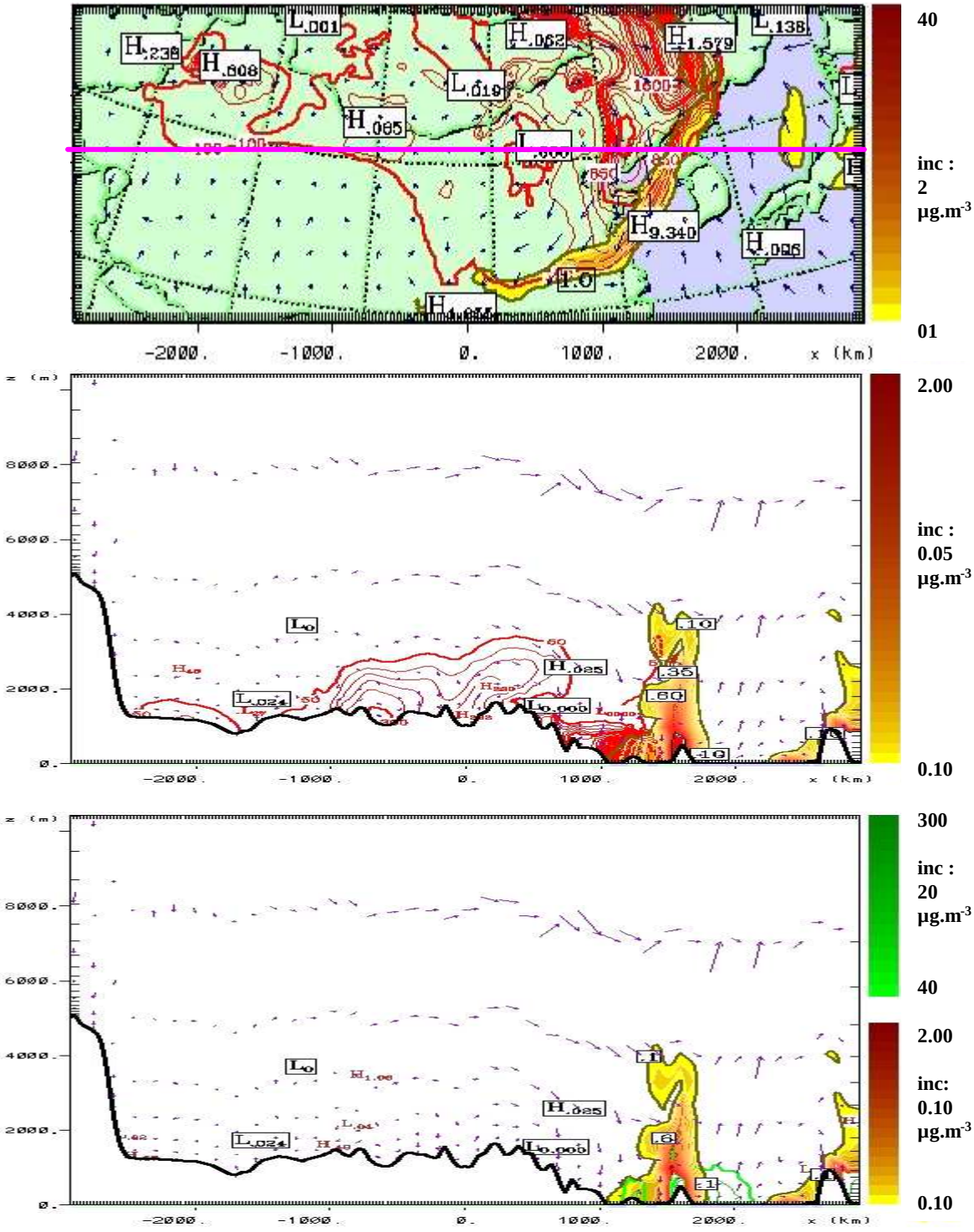


Figures 4.17.c – le 30 Avril 2005 à 00TU (08TL)

Haut: concentrations en aérosol minéral (isocontours rouges) et surfaces des concentrations de SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs).

Médian: profils de concentrations des mêmes espèces que la figure du haut, dans le plan de coupe vertical, en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer.

Bas: profils de concentrations SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs) et des concentrations en SO_2 "libre" (isocontours et labels verts, maximum: 226 $\mu g.m^{-3}$).

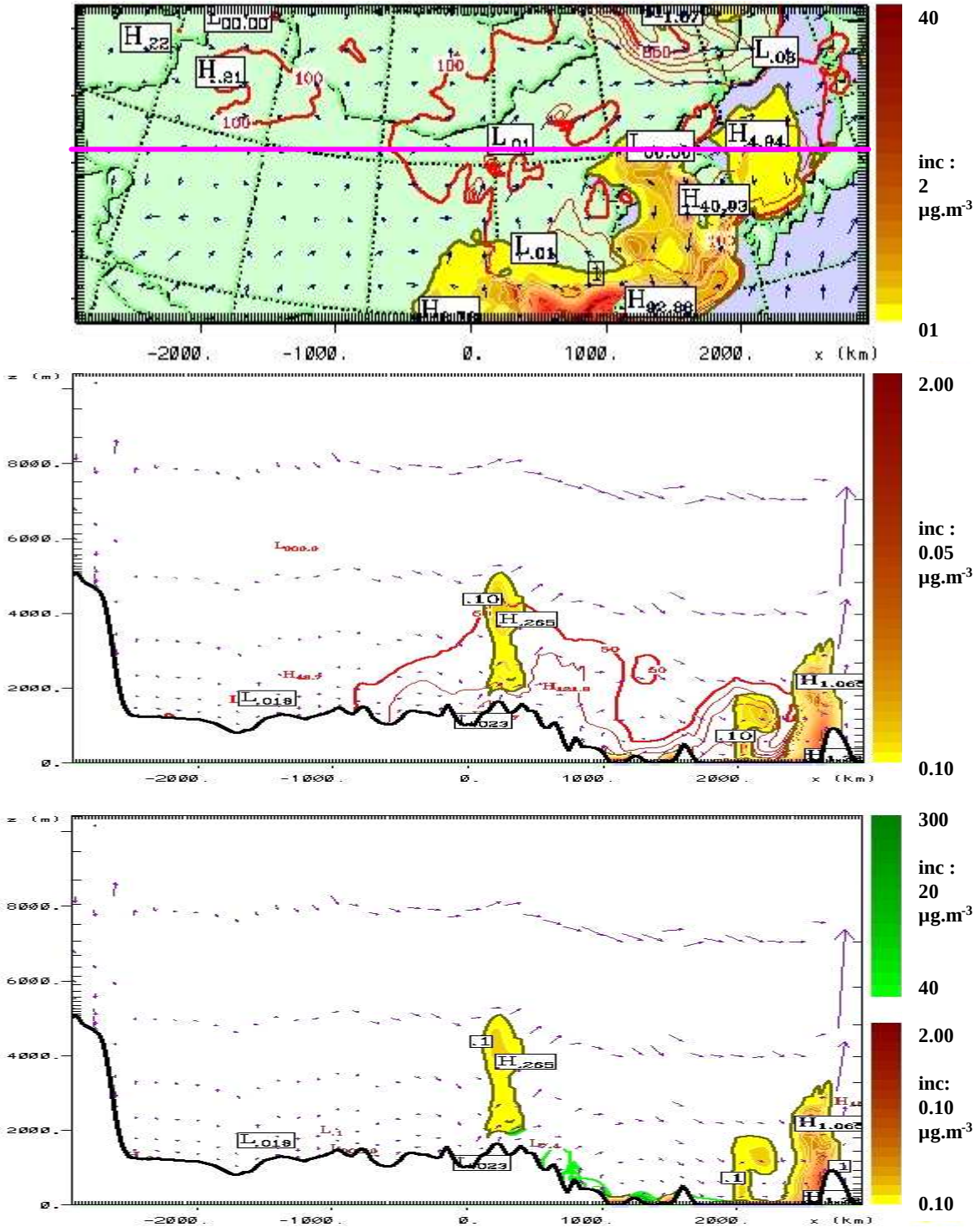


Figures 4.17.d – le 1 Mai 2005 à 00TU (08TL)

Haut: concentrations en aérosol minéral (isocontours rouges) et surfaces des concentrations de SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs).

Médian: profils de concentrations des mêmes espèces que la figure du haut, dans le plan de coupe vertical, en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer.

Bas: profils de concentrations SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs) et des concentrations en SO_2 "libre" (isocontours et labels verts, maximum: 95 $\mu g.m^{-3}$).



Figures 4.17.e – le 2 Mai 2005 à 00TU (08TL)

Haut: concentrations en aérosol minéral (isocontours rouges) et surfaces des concentrations de SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs).

Médian: profils de concentrations des mêmes espèces que la figure du haut, dans le plan de coupe vertical, en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer.

Bas: profils de concentrations SO_2 adsorbé par le minéral (nuances jaunes et labels noirs) et des concentrations en SO_2 "libre" (isocontours et labels verts, maximum: 211 µg.m^{-3}).

Les répartitions zonales des concentrations au niveau du sol de SO_2 capturés par des poussières voient leurs extensions au Sud et à l'Est épouser l'avancée du panache minéral. En reprenant les cartes des *figures 4.11* on s'aperçoit qu'au 28 Avril à 00TU les poussières désertiques abordent juste la zone polluée par le SO_2 sur la Mer Bohai. La figure *4.17.a* indique à cet endroit un maximum de 10.89 $\mu g.m^{-3}$, valeur inférieure à celles qui vont suivre durant les jours à venir. Le 29, figure *4.11.b*, les panaches sont mélangés sur une plus grande distance et la zone de chevauchement présente des maxima de 12.88 $\mu g.m^{-3}$ sur la Mer Bohai et de 43.78 $\mu g.m^{-3}$ en Corée occidentale alors que sur la mer du Japon, où les poussières ne sont pas concentrées à plus de 200 $\mu g.m^{-3}$, la masse de poussières chargées en SO_2 est inférieure à 4.40 $\mu g.m^{-3}$.

La simulation des flux de poussière a montré une émission notable à partir de la fin du 30 Avril. Le 1 Mai, comme les gradients horizontaux de concentration en poussière au niveau des fronts Sud et Est sont très importants, le mélange ne s'opère que sur une ceinture d'environ 200 km de profondeur. Le 2 Mai, les vents baissent d'intensité au Sud et les poussières sont transportées sur l'ensemble de la zone la plus polluée, en conséquence de quoi une fraction croissante de dioxyde de soufre est capturée par les particules minérales. Les maxima du Sud au Nord des côtes de la Mer de Chine varient de 92.88 $\mu g.m^{-3}$ vers Shanghai à 40.93 $\mu g.m^{-3}$ à l'Ouest de la Corée.

Nous remarquons que, sur la Mer du Japon, les concentrations calculées au niveau de la surface sont inférieures à 7 $\mu g.m^{-3}$. Pour caractériser les captures de SO_2 par des poussières susceptibles de se déposer sur le Japon, nous avons tracé les coupes verticales (zonales) de ces concentrations de SO_2 « captifs ». Nous avons fixé le plan de coupe verticale suffisamment au Nord de la zone simulée (trait rose sur les cartes horizontales) pour que les profils observés soient représentatifs de transports susceptibles de polluer le Japon. Le plan Ouest-Est choisi passe au Nord de Beijing et rejoint la région de Toyama, c'est à dire qu'il coupe un ensemble de latitudes où les transports et les quantités de dérivés soufrés illustrent une situation régionale de pollution quasi permanente. La planche médiane des *figures 4.17* superpose les concentrations en SO_2 capturé par les poussières et les isocontours de concentrations en minéraux. Les sorties présentées au bas des *figures 4.17* montrent les superpositions des mêmes concentrations de SO_2 sur l'aérosol minéral avec, cette fois, les isocontours de concentrations de SO_2 gazeux (libre).

Les distributions, d'Ouest en Est, des deux évènements de poussière suivent des évolutions temporelles similaires. En effet, pour l'épisode du 28 Avril, les panaches de surface se distribuent selon l'ordre, toujours d'Ouest en Est :

"minéral propre" ► *"mélange de poussières et de SO_2 "* ► *"SO_2 libre"*

et il apparaît qu'on simule, globalement, à nouveau cette séquence pour l'évènement du 30 Avril - 1 Mai. L'observation de toutes les séquences dans le plan vertical indique que, dans les heures qui suivent le passage d'un front de poussières désertiques d'Ouest en Est, le mélange entre le panache de SO_2 et le panache d'aérosol désertique (du moins là où il est en quantité supérieure à 50 $\mu g.m^{-3}$, valeur minimale des isocontours représentés) s'opère à chaque fois sur des couches atmosphériques qui gagnent en altitude, de 1500 à 2000 m les 29 et 30 Avril et jusqu'à environ 4000 m le 1 Mai, avec, à ces altitudes maximales, des valeurs de concentration en SO_2 capturé de l'ordre de 0.1 $\mu g.m^{-3}$.

Les concentrations de SO_2 capturé par la fraction minérale diminuent très rapidement avec l'altitude, et plus vite, dans l'ensemble, que ne diminuent de leur côté les concentrations de poussières et de SO_2 libre. Dans les basses couches des profils verticaux présentés, les maxima de concentration de SO_2 captifs se répartissent surtout du Nord de la Mer Bohai jusqu'au Japon. Ces maxima sont de 1.83 $\mu g.m^{-3}$ à Séoul le 28 à 21 TU et, pour l'ensemble du plan vertical toutes les 24 heures à 00 TU, 7.22 $\mu g.m^{-3}$ le 28 Avril, 4.30 $\mu g.m^{-3}$ le 29, 4.34 $\mu g.m^{-3}$ le 30, 4.77 $\mu g.m^{-3}$ le 1er Mai et 9.07 $\mu g.m^{-3}$ le 2 Mai 2005.

La *figure 4.18.a* symbolise, par des surfaces circulaires pleines, l'évolution chronologique de la répartition verticale des concentrations de SO_2 capturé par l'aérosol minéral à la verticale de Beijing. Les valeurs numériques sont précisées en quelques points. Les concentrations de SO_2 capturé qui sont représentées sont comprises entre 10^{-3} et 5.10^{-1} $\mu g.m^{-3}$. Ces surfaces de rayons proportionnels aux concentrations peuvent aisément être comparées entre elles, afin d'avoir une idée des intensités relatives des captures dans le temps et de l'altitude où elles ont lieu. Comme le modèle n'apporte pas de poussières désertiques sur Beijing avant la fin de la journée du 27 Avril (TU) il est logique de n'obtenir aucune capture de SO_2 sur du minéral avant le début du 28 Avril. Il est intéressant de noter que pendant la journée du 28, date où les concentrations de poussières en surface sont les plus élevées, la capture des SO_2 évolue peu au cours du temps mais présente un profil vertical assez homogène entre 100 et 1000m. Les plus fortes concentrations de poussières polluées par le SO_2 sont localisées entre la surface et 1500 m d'altitude dans les heures qui suivent l'apogée de la tempête de sable du 28 Avril en surface. Ces mélanges les plus quantitatifs ont lieu jusqu'à 4000-5000 m à la fin du 29 Avril (TU). Pour le second épisode, les valeurs calculées nous semblent trop faibles pour signaler un mélange ayant des conséquences sensibles.

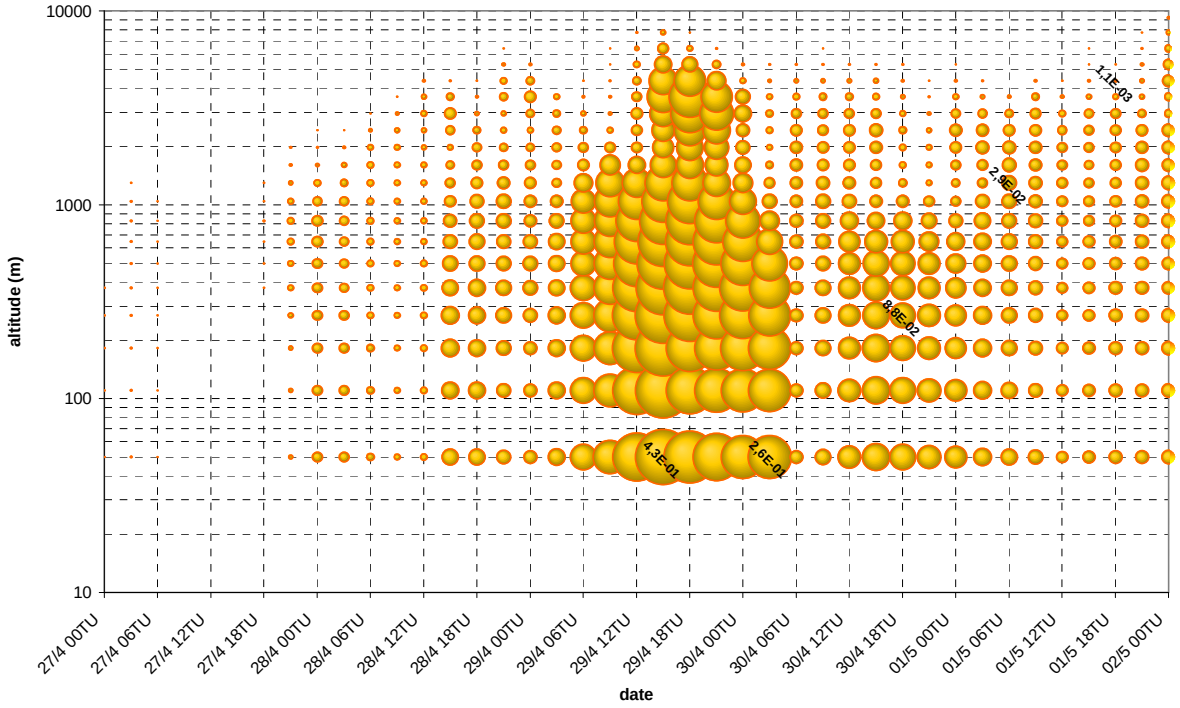


Figure 4.18.a – Représentation symbolique (sphères jaunes) des concentrations de SO_2 capturé par l'aérosol minéral : répartitions verticales (échelle logarithmique des altitudes en mètres) en fonction des dates TU, à la verticale de Beijing.

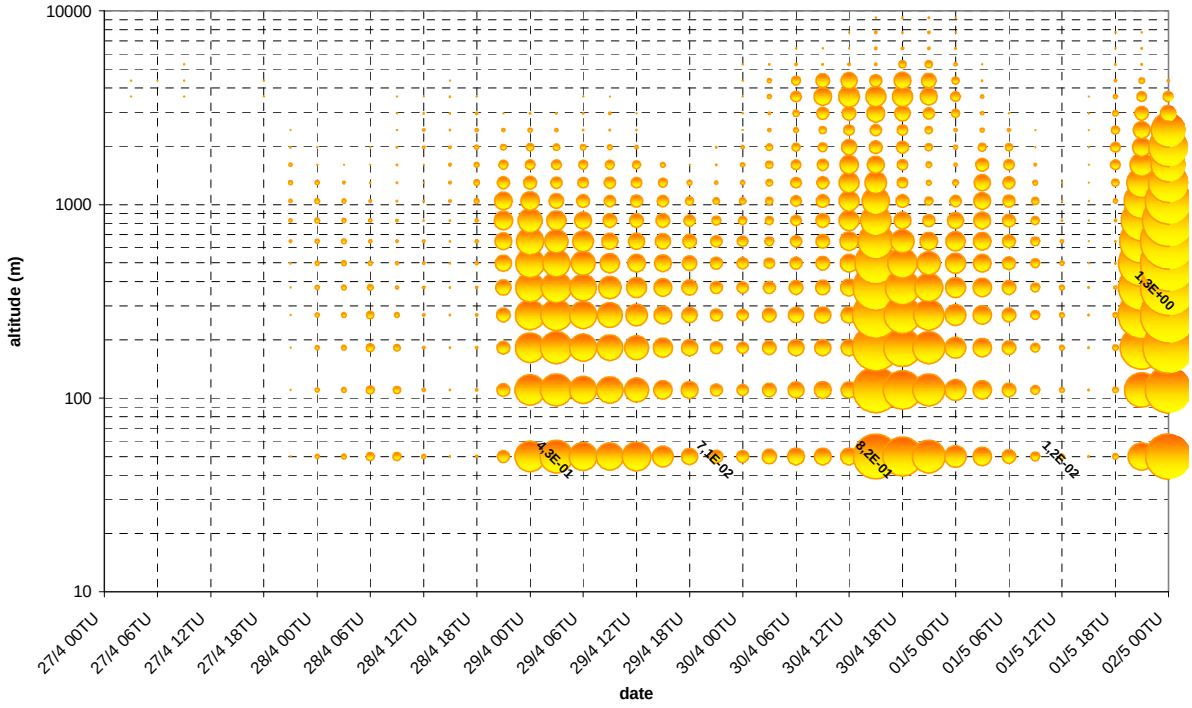


Figure 4.18.b – idem 4.18.a, à la verticale de Toyama.

Nous avons observé qu'à terme, tous les mélanges opérés sur le continent, dans le plan vertical d'étude, sont suivis d'un transport réparti en altitude et qui passe à la verticale du Japon. Ainsi, même si les concentrations de surface en minéral pollué par le SO_2 sont relativement basses sur le continent et sur la Mer du Japon, la quantité verticale de ces poussières susceptibles d'être soumises aux modes de lessivages sub- ou intra- nuageux n'est, en revanche, pas négligeable et on peut supposer que cette pollution participera elle aussi aux pluies acides (dans l'hypothèse d'oxydation du SO_2 capturé) et aux modifications des propriétés optiques et radiatives locales.

La *figure 4.18.b* est construite comme *4.18.a*, mais concerne la verticale de Toyama. On observe que les transports de poussières porteuses de SO_2 sont calculés à partir du 29 Avril et connaissent ensuite deux maxima : l'un à partir du 30 à 15 TU, l'autre à la fin du 1er Mai. Les valeurs calculées concernent de quantités inférieures à 1.3 $\mu g.m^{-3}$. Ces valeurs sont trois fois plus importantes que celles calculées à Beijing. Il n'y a pas de lien direct à établir entre les aérosols à la verticale des deux villes mais on peut se demander, puisque beaucoup moins de poussières ne sont transportées à Toyama qu'à Beijing, si, en « contrepartie », l'aérosol minéral sur Toyama ne serait pas plus « agé » que celui sur Beijing, c'est-à-dire qu'il serait porté par une masse d'air davantage porteuse de SO_2 sur une période plus longue ? Ce type d'analyse, cherchant à différencier quantitativement les historiques d'apports de polluants sur des sites ciblés, pourra faire l'objet d'études ultérieures.

4.4 Les trois types de polluants anthropiques

Les polluants étudiés dans ce paragraphe sont, rappelons-le : BC, SO_2 et sulfates issus de l'oxydation du SO_2. Précisons que si, au paragraphe précédent, nous avons étudié le SO_2 capturé par les poussières désertiques, ici nous ne considérons plus que le SO_2 gazeux « libre ».

4.4.1 – Transports des polluants acides SO_2 et SO_4^{2-}

Les champs horizontaux en surface de SO_2 et de SO_4^{2-} sont reportés respectivement sur les *figures 4.11* et *4.12* présentées au paragraphe 4.2.1. Il apparaît immédiatement que les panaches horizontaux des deux polluants soufrés se juxtaposent partiellement, mais que les sulfates peuvent se rencontrer à des distances importantes de la périphérie des zones les plus concentrées en dioxyde de soufre. Les résultats de simulation de transports et de conversion $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ de Uno (http://atmet.com/html/workshop/presentations/uno.pdf) montrent que les concentrations de surface, en sulfates, mesurées en 4 stations insulaires autour du Sud du Japon varient typiquement entre quelques unités et 15-30 $\mu g.m^{-3}$ et nos résultats s'inscrivent dans ces ordres de grandeur en ces sites éloignés des sources de SO_2. En effet, les isocontours des concentrations en SO_4^{2-} modélisées sur la Mer du Japon sont compris (*fig. 4.12*) entre 5 et 40 $\mu g.m^{-3}$. Des mesures ont été effectuées également dans l'Océan Pacifique. A approximativement 1000 km au Sud Est du Japon, des concentrations en nss-SO_4^{2-} atteignant 4 $\mu g.m^{-3}$ ont été observées à la surface de l'océan, à la fin février 2002 [Fujitani et al., 2004].

Nous proposons en complément de l'approche en surface, une carte des concentrations en SO_4^{2-}, cette fois à 1450 m d'altitude, où sont également indiquées les concentrations en eau condensée sous toutes ses formes (*figure 4.19*). Nous simulons peu d'hydrométéores vers cette altitude. Cela correspond à la réalité des observations faites sur le continent. Grâce aux images MODIS présentées au chapitre 3 (*fig. 3.20*), nous avons émis l'hypothèse que les nuages observés en fin de période d'étude devaient se situer au dessus de la couche de transport des particules minérales (i.e. au moins au dessus de 1500 m) et qu'ils devaient induire relativement peu de pluies puisque les panaches du 30 Avril – 1 Mai étaient peu affectés.

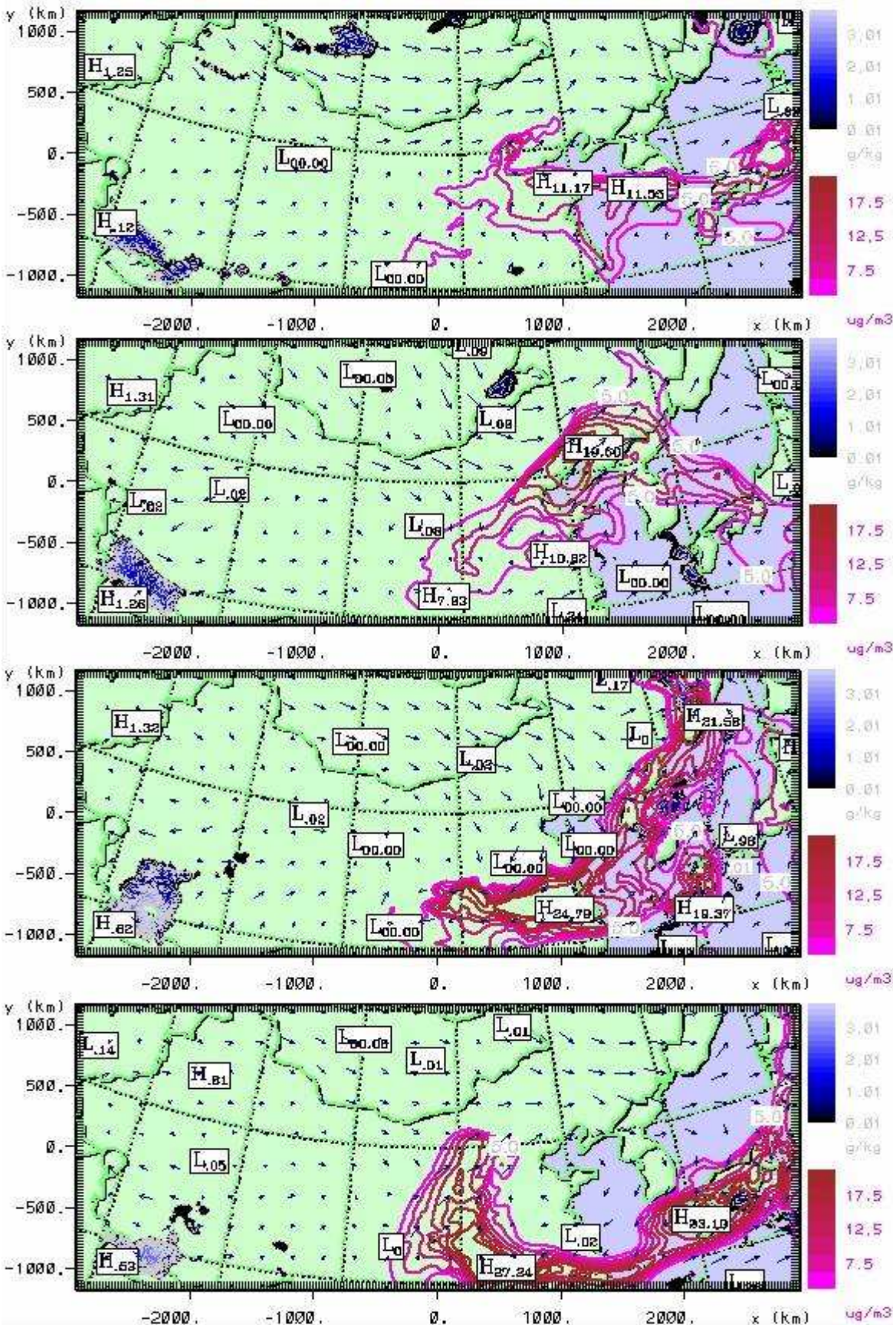
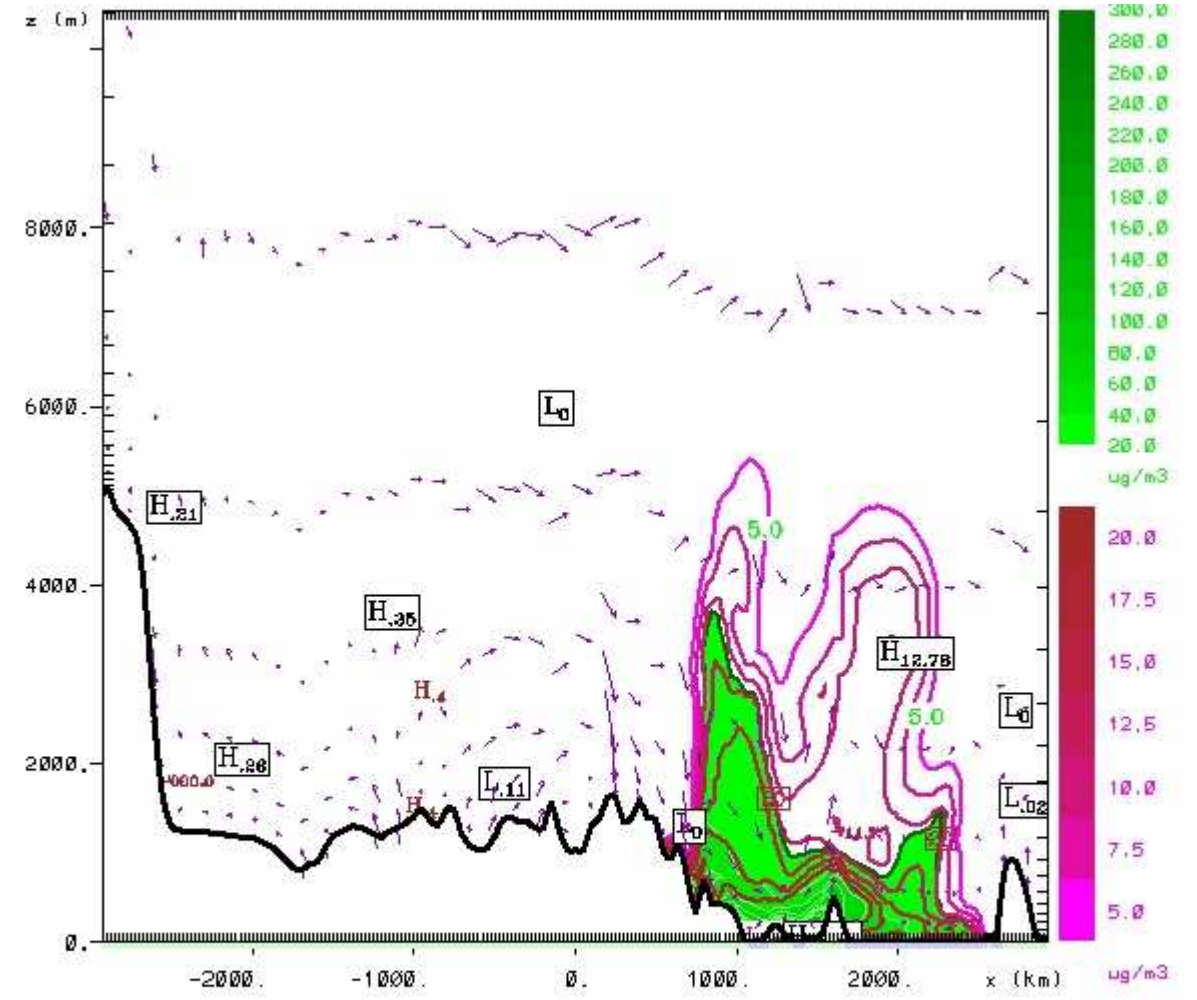


Figure 4.19 – Champs des concentrations en SO_4^{2-} ($\mu g/ m^3$ d'air, nuances de mauve et labels noirs) et en eau condensée (g/kg d'air, nuances bleues et labels gris) à 1450 m d'altitude. Situation modélisée à 00 TU (08 TL) les 29/04 (a), 30/04 (b) , 01/05(c) et 02/05/2005 (d).

Pour terminer la description des transports des composés soufrés, on illustre, sur un cas de figure, la répartition spatiale des SO_4^{2-} et des SO_2 en altitude, en reprenant le plan de coupe verticale employé déjà choisi au paragraphe 4.3 pour illustrer le couple minéral/SO_2 (*figure 4.20*). On note ainsi que l'extension verticale des composés soufrés peut atteindre des valeurs élevées. En particulier, les concentrations en sulfate peuvent atteindre plusieurs μgm^{-3} à 5 km d'altitude, alors que le SO_2, à ces mêmes altitudes, atteint 20 μgm^{-3}.



Apr May 2005		grid 1			
y = 100. km	2005-04-30-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	CONC SO2 (ug/m3)	0.000	226.4	20.00	1e 0
contours	CONC SO4 (ug/m3)	0.000	73.98	2.500	1e 0
vectors *	6 m/s horiz 0.01 m/s vert	0.3758E-03	33.07		

Figure 4.20 – le 30 Avril 2005 à 00TU (08LT)
Concentrations en ions SO_4^{2-} (CONC_SO4: isocontours violets et labels verts) et surfaces des concentrations en SO_2 (CONC_SO2: nuances vertes, contour externe : 20 $\mu g.m^{-3}$, et labels noirs), en fonction de l'altitude.

4.4.2 – Tendances communes aux concentrations des polluants sur les 3 villes d'étude

Dans le but de quantifier les relations possibles de proportionnalité entre les 3 types de polluants anthropiques, Black Carbon, Dioxyde de Soufre et ions Sulfates, nous avons tracé à Hohhot, Beijing et Toyama, les nuages de points (*figures 4.21*) mettant en regard les concentrations volumiques de surface des 3 couples possibles de polluants : le SO_2 par rapport au BC (SO_2 vs BC), le SO_4^{2-} par rapport au SO_2 (SO_4^{2-} vs SO_2) et enfin le SO_4^{2-} par rapport au BC. Les seules réactions chimiques envisagées dans ce travail sont en relation directe avec la comparaison SO_4^{2-} vs SO_2, c'est pourquoi il est intéressant de savoir comment la dynamique et les différences de répartitions/intensités des zones émettrices des polluant primaires (BC et SO_2) ont des conséquences sur les convergences ou divergences de concentrations respectives en 3 villes éloignées les unes des autres et représentatives de climatologies locales et de pollutions endogènes très différentes.

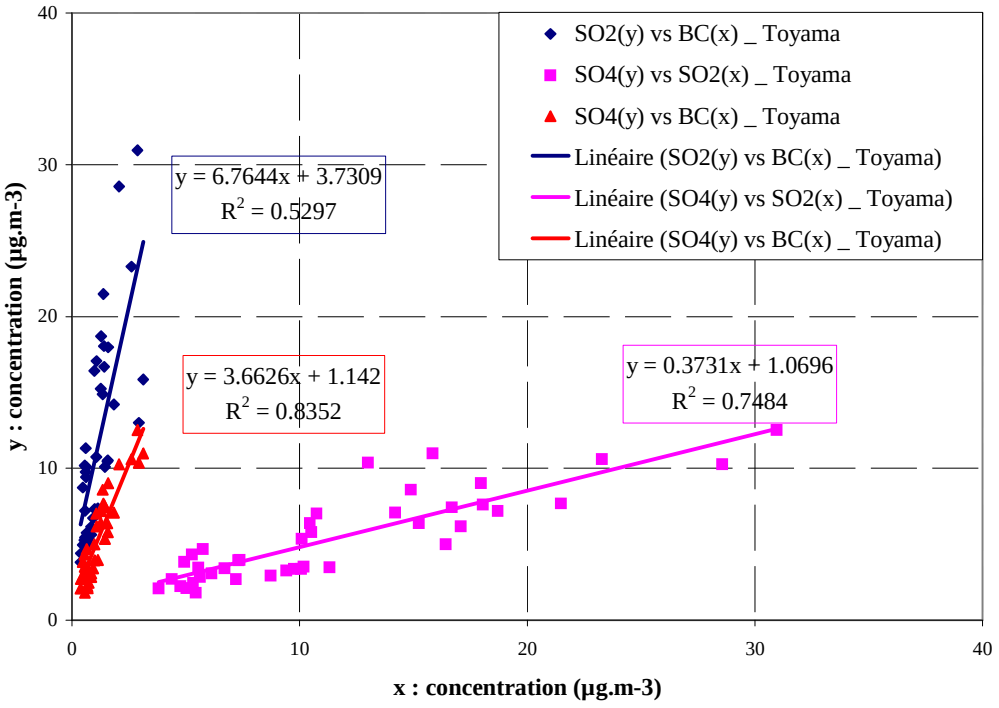


Figure 4.21.a – Comparaison des concentrations des 3 types de polluants calculées à Toyama

Les nuages de points présentent des tendances linéaires visibles à l'œil nu, c'est pourquoi nous avons réalisé des régressions de type linéaires pour toutes les distributions. Les régressions linéaires utilisent la méthode des moindres carrés et associent à chaque droite son équation et son coefficient de régression linéaire R^2.

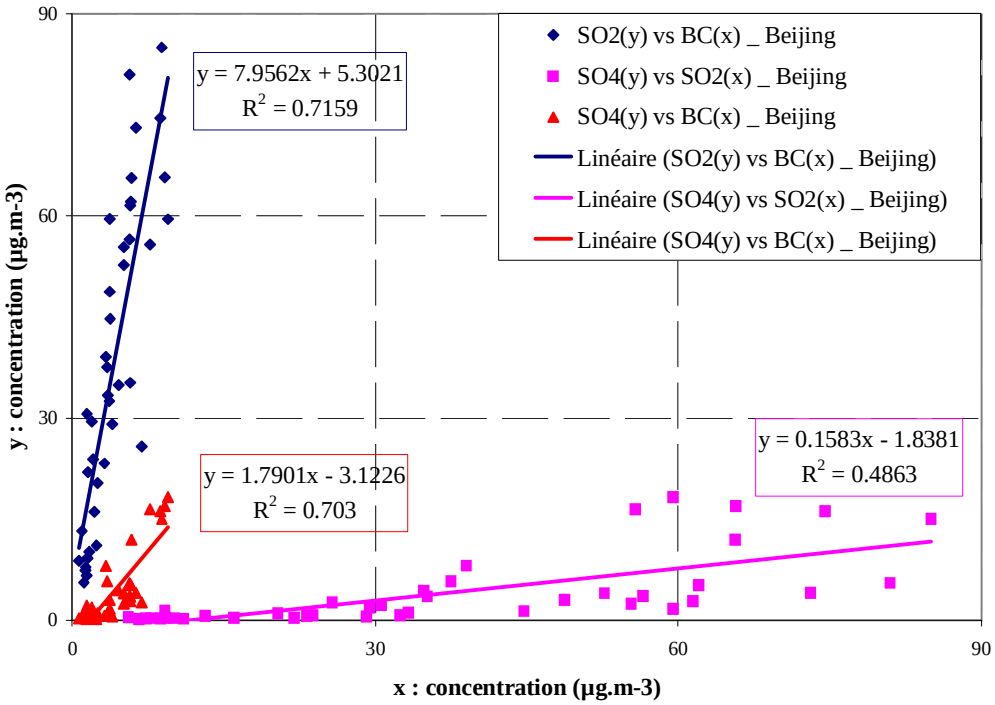


Figure 4.21.b – Comparaison des concentrations des 3 types de polluants calculées à Beijing

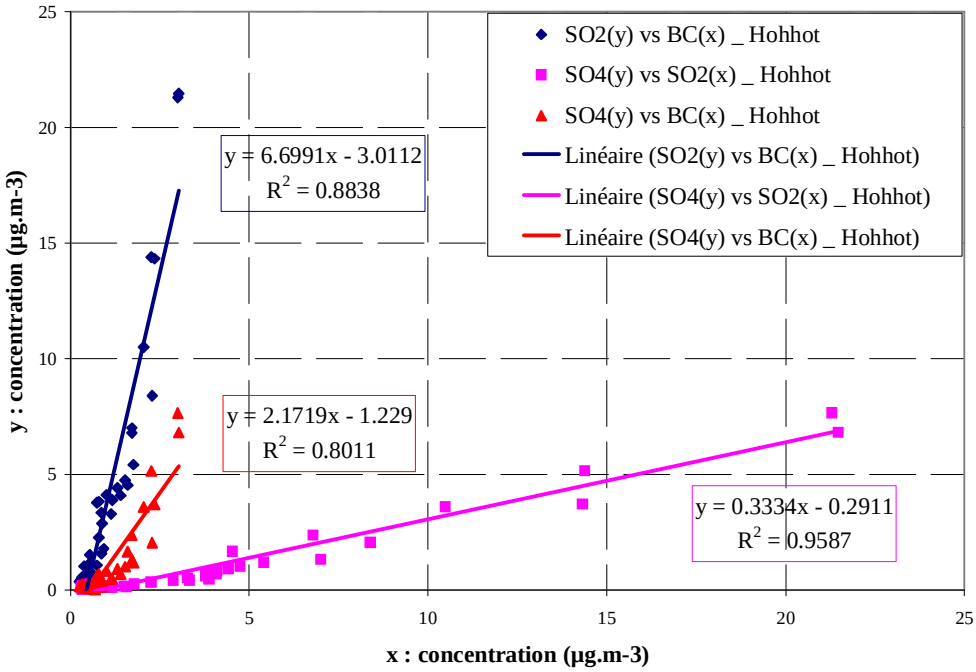


Figure 4.21.c – Comparaison des concentrations des 3 types de polluants calculées à Hohhot

Comme nous l'avions déjà relevé, cette tendance à une relation linéaire systématique entre les gammes de concentrations de polluants différents est somme toute logique si l'on se souvient de la proximité globale des sources primaires de SO_2 et de BC et les zones locales communes où ces cadastres présentent leurs flux propres les plus élevés et les plus faibles.

A Toyama (*fig 4.21.a*), l'effet de distance depuis les sources continentales associé à une prise en compte chimique différente du modèle (BC inerte et SO_2 réactif), sont probablement le facteur déterminant de la baisse de corrélation entre la pollution en BC et celle en SO_2 par rapport aux corrélations de ce type calculées en Chine (R^2 vaut environ 0.72 à beijing et 0.88 à Hohhot). A contrario, les processus de vieillissement des masses d'air expliquent en partie pourquoi la corrélation entre sulfates et BC reste importante au Japon malgré l'effet de distance, l'épuisement des concentrations en SO_2 participant au renouvellement des concentrations de SO_4^{2-}.

On constate que c'est justement en zone source de SO_2, à Beijing (*fig 4.21.b*), que la concentration en SO_2 est la moins en phase avec les ions sulfates. Ce constat illustre nos commentaires des chronologies comparées des concentrations de SO_2 et de SO_4^{2-} en surface et en charge colonne (*fig. 4.14* et *4.15*). Le polluant inerte BC, injecté dans l'air à flux constant est lui, bien corrélé à la fois au polluant primaire SO_2 et aux SO_4^{2-} ($R^2 > 070$).

A Hohhot (*fig 4.21.c*), loin des sources de SO_2 et de BC, la corrélation est bien linéaire ($R^2 \sim 0.96$) entre les maigres quantités de polluants soufrés qui sont parvenus à destination dans, certainement, les mêmes masses d'air. L'argument de l'éloignement aux sources d'émission (si on néglige la pollution locale) de flux similaires, conjugué à celui d'une comparaison entre des concentrations faibles et du même ordre de grandeur, peut expliquer pourquoi, à Hohhot, on constate des corrélations importantes ($R^2 > 0.80$) entre deux catégories de polluants anthropiques qui sont pourtant chimiquement éloignés les uns des autres: (SO_2/SO_4^{2-}) et BC.

En tout état de cause, ce type d'exercice qui consiste à comparer les corrélations qui peuvent exister entre différents polluants et aérosols sur des villes en Asie orientale nécessite des études statistiques documentées à partir de mesures sur le long terme pour contraindre des modèles qui chercheraient à proposer des climatologies locales de ces polluants [Wang et al., 2003 ; Kato et al., 2004]. Nos comparaisons servent donc à analyser un comportement témoin des transports de 3 polluants sur une semaine du printemps 2005 et d'en conclure que nous

pouvons dorénavant appliquer ce modèle de polluants sur des périodes beaucoup plus longues.

4.5 Caractérisations optiques des structures verticales des panaches de pollution

4.5.1 – Analyses des Indices d'Aérosol TOMS à la lumière des propriétés optiques des charges colonnes de polluants

Nous avons discuté des charges colonnes en poussières désertiques au paragraphe 3.2.3, afin de vérifier si celles-ci pouvaient convenablement rendre compte des indices aérosols TOMS (*Aerosol Index* AI). La correspondance qualitative est tout à fait convenable pour la première phase des journées étudiées: les 27-28-29 Avril. Le 30 Avril, un AI supérieur à 4 indique une forte concentration d'aérosols absorbants répartis depuis le Nord Est de la Chine jusqu'au Japon, mais la charge colonne d'aérosol minéral que nous calculons sur cette zone semble présenter des valeurs trop basses pour, même qualitativement, pouvoir restituer cet AI. Nous avions admis la possibilité d'un retard pris dans la simulation des vents de surface par rapport à la météorologie réelle (§ 3.2.3). Ce déphasage de nos calculs a pour conséquence de ne produire des soulèvements au Nord Est de la Chine qu'à partir de la fin de la journée du 30 Avril.

Rappelons que l'AI TOMS est issu de la comparaison entre la rétrodiffusion réellement mesurée au niveau du sommet d'une couche troposphérique chargée en aérosols, et la rétrodiffusion théorique supposée être celle d'un air seulement empli de particules sphériques, purement diffusives. Cette approche semi-quantitative inclut, par conséquent, dans le même indice positif, les aérosols absorbants dans l'UV proche, c'est-à-dire essentiellement les signatures de tempêtes de sable ou celles d'incendies de forêt, les produits de feux de biomasse [Herman et al., 1997; Torres et al., 2002] ou encore des cendres volcaniques [Seftor et al., 1997]. Les aérosols non absorbants comme les sulfates et les sels marins sont, de leur côté, repérés par un AI négatif.

Nous avons cherché à savoir si des aérosols de pollution pouvaient contribuer, à leur niveau, à l'indice TOMS supérieur à 4 observé à partir du 30 Avril 2005. Nous nous sommes interrogés sur la façon dont la capture du SO_2 par les poussières minérales influe sur les valeurs de l'indice TOMS. Nous avons supposé qu'à terme, le SO_2 capturé est oxydé en

sulfate. Dans l'atmosphère océanique à l'Est de la zone simulée, les ions sulfates portés par les poussières minérales rendent, de fait, ces dernières plus hygroscopiques [Iziomon and Lohmann, 2003], à la suite de quoi on peut s'attendre à des modifications des propriétés optiques des poussières. Mais il est très difficile de prévoir une tendance simple de cet effet et ce d'autant plus que la présence de sulfate induit des conséquences secondaires ou ternaires (en présence d'ammoniaque) sur les tailles et les possibilités de nucléations des particules [Korhonen et al., 2003], modifiant certainement encore les propriétés optiques du mélange final. Les sulfates qui rendent les poussières hygroscopiques peuvent rendre, par conséquent, les molécules plus sphériques et renforcer leur aspect diffusif. Or, nous verrons au paragraphe suivant, qu'en milieu à très forte humidité relative, les sulfates sont caractérisés par des sections efficaces d'extinction très élevées. Nous ne pouvons donc pas quantifier de façon certaine, le sens dans lequel le SO_2 capturé par les poussières contribue à l'AI.

Autre hypothèse mieux quantifiable pour expliquer une modification de l'AI TOMS par une pollution anthropique: les BC mélangés, de façons externes et internes, avec d'autres aérosols [Chylek et al., 1995; Jacobson, 2001]. Cette hypothèse est motivée par le fait que l'algorithme TOMS, comme nous l'avons rappelé, ne peut pas distinguer les fractions minérales et carbonées dans le contenu d'un mélange d'aérosols, ce qui induit par exemple des erreurs d'interprétation dans la région du Sahel en hiver quand les mélanges feux-poussières sont possibles [Torres et al., 2002]. Comme l'ont établi Chuang et al. [2003], l'implication des matières carbonées dans une possible modification de la section efficace d'absorption des aérosols minéraux est difficile à établir de façon systématique. Mais les mesures de terrain réalisées pendant quatre journées de tempêtes de sable, au printemps 2001 sur Chine-Corée-Japon, montrent une synchronisation de facto entre l'accroissement des propriétés absorbantes des aérosols submicroniques et l'augmentation de la concentration de poussières minérales en présence de particules carbonées. Nous pouvons simplement suggérer que cette tendance se répercute directement sur les AI. En effet, une augmentation de l'absorption conjointe des BC et des poussières minérales devrait résulter en une diminution de la reflectivité de ces deux espèces et donc devrait provoquer une hausse de l'AI. Nous avons constaté que les transports de ces deux types d'aérosols absorbants se rejoignaient au Nord-Est de la zone simulée (avec des concentrations en BC supérieures à 30 $\mu g.m^{-3}$ en zone source en Corée) à partir du 30 Avril, en conséquence de quoi nous pensons que les BC ont pu contribuer, au sein de ces mélanges, à l'AI élevé proposé par TOMS sur cette région aux mêmes dates.

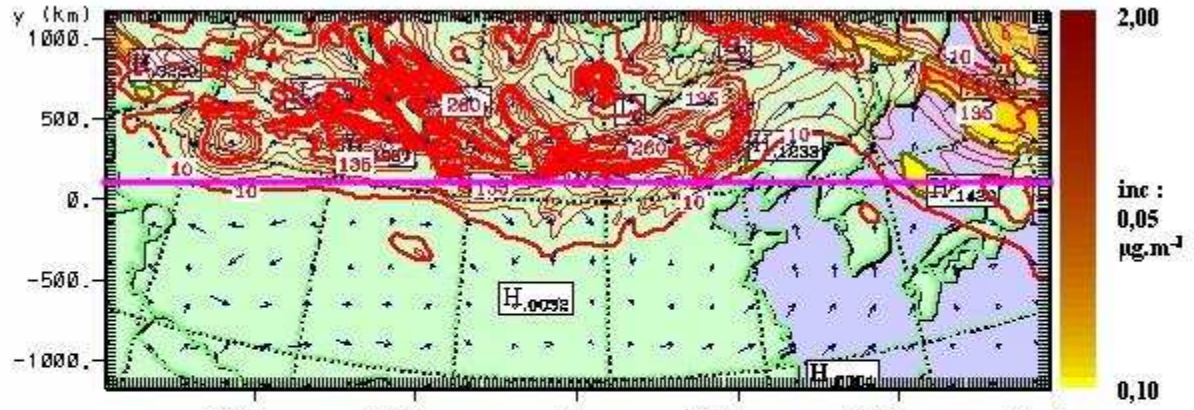
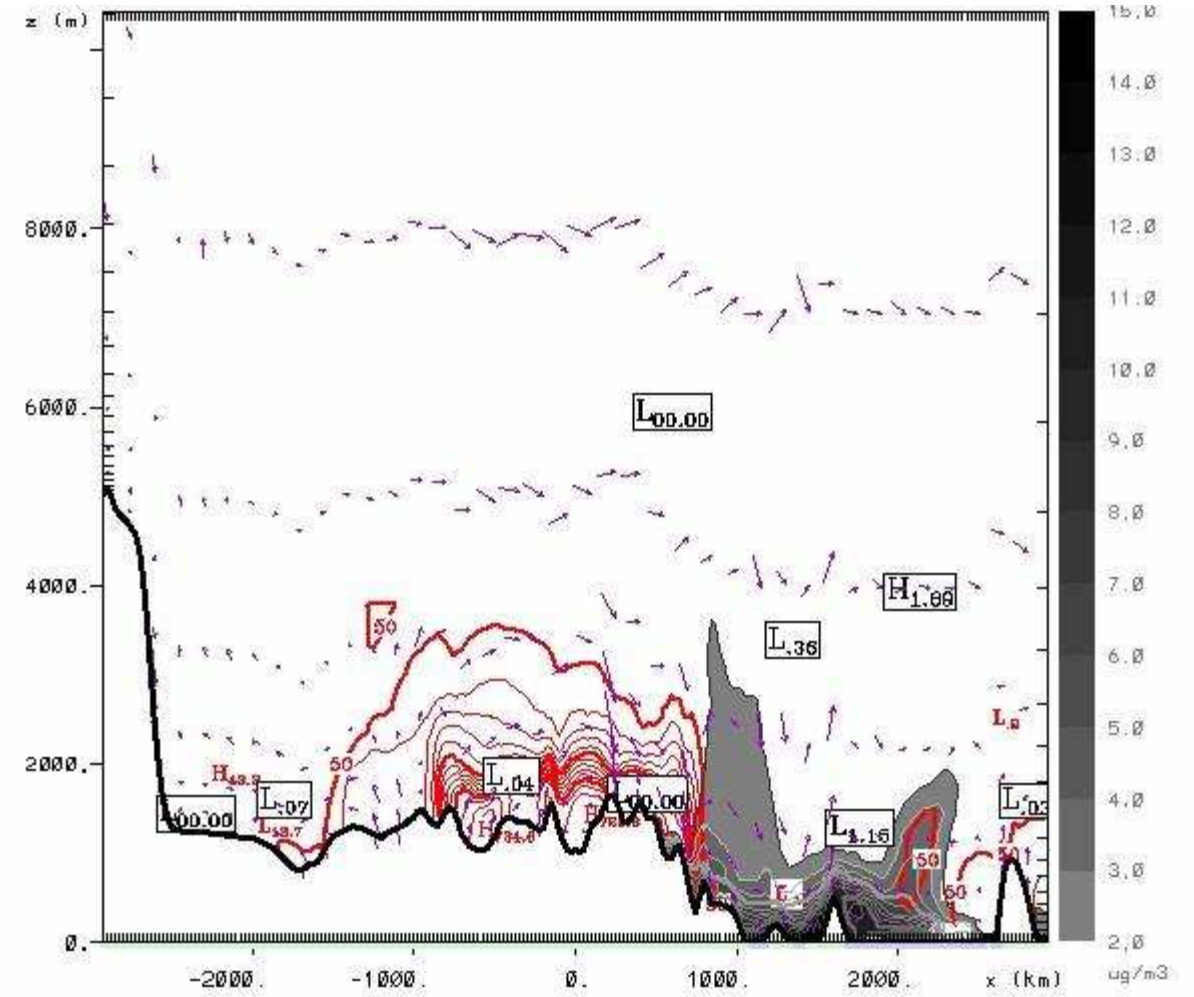


Figure 4.22.a – Champs horizontaux, vers 1450 m d'altitude, des concentrations volumiques en poussières minérales (isocontours rouges) et de SO_2 capturé par l'aérosol minéral (nuances oranges). Situation modélisée à 00 TU (08 LT) le 30 Avril 2005.



Apr May 2005		grid 1			
y = 100. km	2005-04-30-0000.00 UTC	min	max	inc	lab*
contours	cmas (ug/m3)	0.000	734.6	50.00	1e 0
contours	CONC BC (ug/m3)	0.000	16.15	1.000	1e 0
vectors	6 m/s horiz 0.01 m/s vert	0.3758E-02	33.07		

Figure 4.22.b – le 30 Avril 2005 à 00TU (08LT) - Concentrations en BC (CONC BC: nuances de gris) et en poussières minérales (cmass: isocontours rouges), en fonction de l'altitude.

Que peut-on déduire, comme conséquences, de la coexistence régionale des aérosols désertiques, des BC et des sulfates ?

Nous avons constaté sur les coupes horizontales la présence d'ions SO_4^{2-} calculés jusqu'à près de 80 $\mu g.m^{-3}$ au Sud de la Corée le 30 Avril. Les BC qui sont également présents sur cette région auront tendance à accroître l'AI tandis que les sulfates auront tendance, si l'humidité n'est pas trop élevée, à le réduire. Or, l'AI est une fonction rapidement croissante de l'altitude à laquelle est détectée la réflectivité UV. Ainsi, TOMS peut complètement manquer un panache constitué de particules absorbantes mais circonscrit à un transport de surface masqué par d'autres aérosols ou hydrométéores à son zénith [Huebert et al., 2003], tout comme il peut quantifier un transport d'aérosol minéral ou carboné comme intensément chargé en poussières si celui-ci s'effectue à haute altitude [Kubilay et al., 2005]. Il se trouve que, pour le 30 Avril à 00TU, nous simulons des concentrations de poussières minérales formant un panache horizontal à 1450 m d'altitude de concentration dépassant les 135 $\mu g.m^{-3}$ entre la Corée et le Japon (*figure 4.22.a*) alors que la concentration de surface est légèrement inférieure à cette estimation (*figure 4.11.c*). Cette concentration notable en altitude irait dans le sens d'un AI élevé sur ce secteur. Malgré tout, l'aérosol minéral ne peut pas expliquer à lui seul ces valeurs d'AI car, dans le même temps, sur la Mongolie, les concentrations en minéral en altitude sont encore supérieures à celles calculées sur l'océan alors que l'AI n'y dépasse pas 3. La participation des SO_2 capturés par les poussières agit dans un sens que nous ne maîtrisons pas, mais il n'en demeure pas moins que le panache d'altitude porteur d'aérosol minéral au-dessus de la Mer du Japon subit un mélange au moins externe avec les BC et les sulfates, mélange qui n'existe pas au-dessus de la Mongolie. Or, et pour finir, Huebert et al. [2004] ont montré, à partir de données ACE_Asia, que, dans la troposphère libre, le ratio des carbones totaux sur les *nss* sulfates varie de 3.2 à 6.0, c'est-à-dire que les aérosols carbonés (absorbants) sont beaucoup plus concentrés que les *nss* sulfates (diffusants) dans la haute troposphère. Sur les *figures 4.20* et *4.22.b* on simule des altitudes similaires de panaches de BC et de composés soufrés qui sont du même ordre de grandeur, on ne peut donc pas rendre compte d'un tel contraste de concentrations mais juste d'un apport de BC en altitude supérieur à ce que calculent la plupart des autres modèles.

Les *figures 4.23* et *4.24* montrent les simulations de charges colonnes en BC et SO_4^{2-} les 29 et 30 Avril, et l'on se reportera aux *figures 3.12.c* et *3.12.d* pour les charges colonne en aérosol minéral. Pendant la journée du 29 Avril, en plus de la présence des poussières minérales (*fig. 3.12.c*) entre la frontière Chine Mongolie et la Mer Bohai, on distingue nettement les simulations de colonnes intégrées de polluants anthropiques à la verticale de la région de Beijing (*fig 4.23*), précisément là où l'AI est maximal. Pour le 30 Avril, les aérosols minéraux décrivent une colonne verticale disséminée d'Ouest en Est entre un maximum de 1.0 $g.m^{-2}$ sur le désert d'Horqin et environ 0,4 $g.m^{-2}$ en direction du Japon, au Nord Est de la carte (*fig. 3.12.d*). La *figure 4.24* montre que, sur cette même région où l'AI prend des valeurs supérieures à 4, nous simulons le 30 Avril la présence de colonnes de BC en quantités supérieures à 0.02 $g.m^{-2}$ (12TU) ainsi que de charges colonnes en SO_4^{2-} supérieures à 0.02 $g.m^{-2}$ aux mêmes endroits.

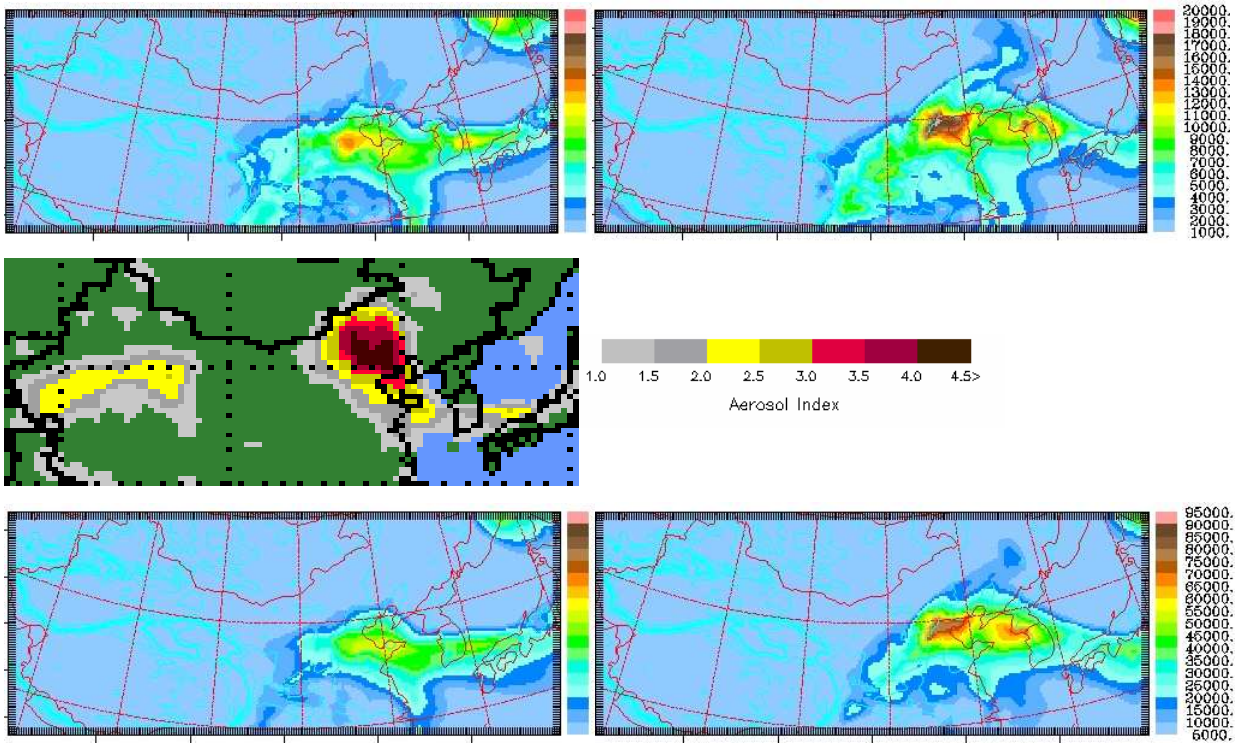


Figure 4.23 – le 29 Avril 2005, à 03TU (11LT) : images de gauche, et à 15 TU (23 LT) : images de droite – Charges colonne en BC (images du haut, échelle de 1000 à 20000 µg.m^{-2}) et ions SO_4^{2-} (images du bas, échelle de 5000 à 95000 µg.m^{-2}), comparées à l'image d'indice d'aérosol TOMS (au centre) pour le 29 Avril 2005.

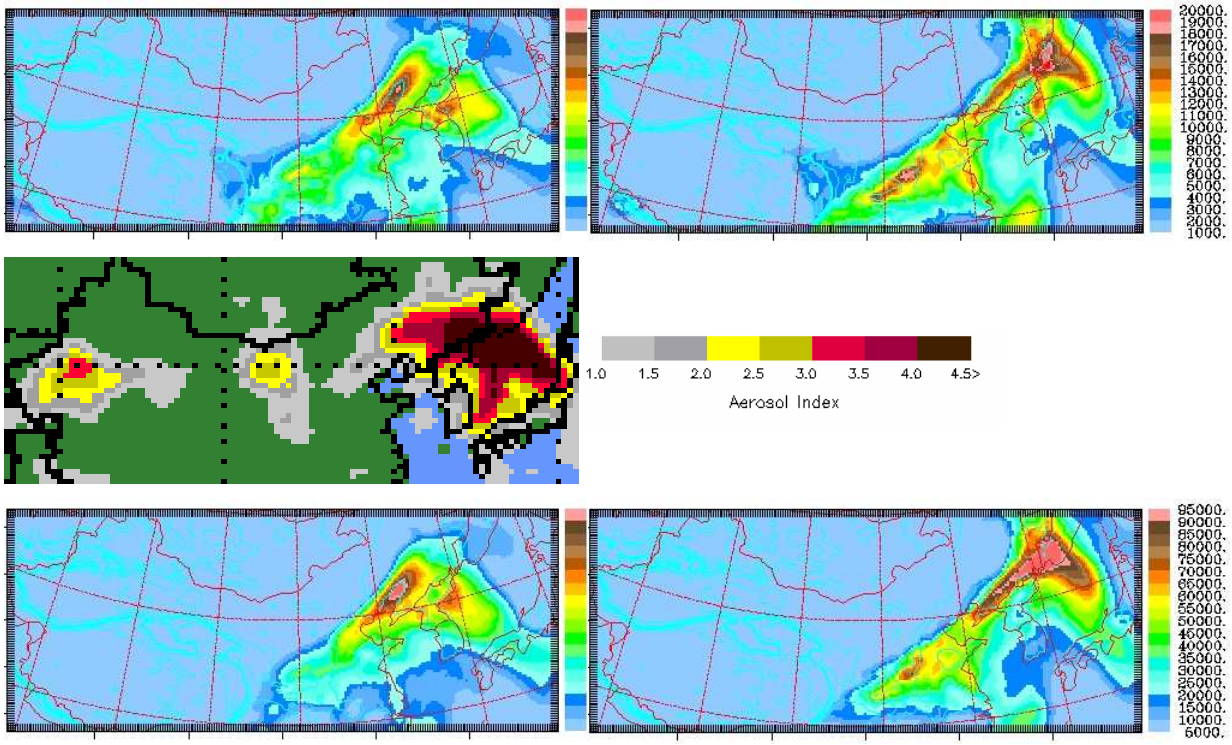


Figure 4.24 – le 30 Avril 2005, à 03TU (11LT) : images de gauche, et à 12 TU (20 LT) : images de droite – Charges colonne en BC (images du haut, échelle de 1000 à 20000 µg.m^{-2}) et ions SO_4^{2-} (images du bas, échelle de 5000 à 95000 µg.m^{-2}), comparées à l'image d'indice d'aérosol TOMS (au centre) pour le 30 Avril 2005.

Pour conclure, on peut suggérer que lorsque le mélange, au moins externe, (poussières/BC/SO_2/SO_4^{2-}) a effectivement eu lieu, des BC devaient probablement être transportés en altitude. Ces BC ont, d'une part, augmenté l'AI par leurs propres caractéristiques optiques et, d'autre part, pu masquer les effets radiatifs des ions sulfates qui eussent tendu à diminuer l'AI.

4.5.2 – estimations des épaisseurs optiques des colonnes de polluants et comparaisons aux données optiques de terrain

La représentation du cycle des aérosols pris en compte dans cette étude se doit de trouver une validation dans les observations des propriétés optiques de ceux-ci. Nous avons approfondis l'emploi des AI TOMS au paragraphe précédent en concluant que certaines interprétations de nos résultats mises en perspectives avec cet outil satellitaire restent spéculatives. Nous entreprenons maintenant une analyse plus quantitative basée sur des données radiométriques acquises en surface : épaisseurs optiques (AOT) et exposants d'Angström.

- Principe de calcul des AOT.

Afin d'approcher les ordres de grandeur ainsi que les variations temporelles des épaisseurs optiques que peuvent impliquer les colonnes d'aérosol dont nous calculons les concentrations, nous avons adopté la simplification suivante : chacun des quatre types d'aérosols étudiés se voit attribuer une section spécifique d'extinction $\sigma_{j\ ext}$, en $m^2.g^{-1}$. La section (ou surface) spécifique d'extinction cumule, en une unique variable physique, les aptitudes spécifiques de l'aérosol à absorber et diffuser les ondes du spectre UV-visible-IR portées par le rayonnement solaire. L'intérêt essentiel de $\sigma_{j\ ext}$ réside dans sa simplicité d'emploi car il suffit de multiplier cette caractéristique d'un aérosol de l'espèce *j* par sa charge colonne C*j* (en $g.m^{-2}$) pour obtenir immédiatement l'épaisseur optique τ_j correspondante : $\tau_j = \sigma_{j\text{ext}}.C_j$.

Il nous faut cependant reconnaître que cette simplification s'effectue au détriment d'une détermination rigoureuse et complète de σ_{ext} car, comme le développent par exemple D'Almeida et al. [1991] et Seinfeld et Pandis [1998], ce coefficient dépend dans les basses couches atmosphériques non seulement de la nature chimique de l'aérosol mais aussi, entre autre, de la longueur d'onde à laquelle il est soumis [Fialho et al., 2005], de sa géométrie réelle (depuis la distribution collective en tailles granulométriques [Chin et al., 2002 ; Kalashnikova and Sokolik, 2002]] jusqu'aux structures individuelles éventuellement fractales, [Kasparian, 1997]) et de la façon dont il peut être aggloméré à d'autres espèces en phase aqueuse ou solide [Martins et al., 1998 ; Ricard, 2001].

Signalons, pour ce qui concerne notre corpus restreint d'aérosols, que les sulfates ont une diffusivité rapidement croissante avec l'humidité relative [Lowenthal et al., 1995, Carrico et al., 2003] et que si les sulfates sont coagulés sur des BC, la capacité absorbante de ces derniers augmente d'un facteur 2 à 2.5 par rapport à celle qu'ils possèdent en air libre ou au sein d'un mélange externe [Sato et al., 2003]. Une majeure partie des aérosols de pollutions émis dans un contexte urbain ou continental est transporté sur les côtes océaniques ainsi qu'au dessus des mers. Dans une atmosphère à 80 % d'humidité relative (RH), Li et al. [2001] ont paramétrisé en détail les propriétés optiques de différents aérosols sulfatés. Dans une approche moins exhaustive, Penner et al., [2002] ont pris comme valeur de référence $\sigma_{SO4\ ext}$ = 9.94 $m^2.g^{-1}$ mais précisent que la section spécifique d'extinction atteint $\sigma_{SO4\ ext}$ = 44.0 $m^2.g^{-1}$ si l'humidité relative est de 99 %. Pour RH = 40 %, les auteurs ont utilisé $\sigma_{BC\ ext}$ = 11.4 $m^2.g^{-1}$ dans leurs simulations d'impacts radiatifs des aérosols et ils considèrent que pour RH = 99% les Black Carbon ont une aptitude à absorber le rayonnement quantifiée par $\sigma_{BC\ ext}$ = 16.9 $m^2.g^{-1}$.

La section spécifique d'extinction des poussières minérales dépend tout particulièrement de leurs dimensions. Les aérosols minéraux sont intrinsèquement non sphériques mais si on caractérise malgré tout chacun d'entre eux par un rayon géométrique « équivalent », leur section spécifique $\sigma_{d\ ext}$ est une fonction rapidement décroissante de ce rayon approché.

Nous avons fixé la section spécifique d'extinction de la fraction du SO_2 capturé par le minéral, à une valeur égale à celle des sulfates, suivant en cela l'hypothèse, déjà évoquée, d'une oxydation, à terme, du SO_2 capturé par les poussières.

Le *tableau 4.III* , ci-après, récapitule les valeurs bibliographiques de sections efficaces d'extinctions (la plupart établies entre 500 et 600 nm) grâce auxquelles nous avons fixé notre choix des $\sigma_{j\ ext}$ représentatives des extinctions produites par les quatre aérosols. Ces valeurs ont été arrêtées à :

Sulfates: $\sigma_{SO4\ ext}$ = 8 $m^2.g^{-1}$; Black Carbon: $\sigma_{BC\ ext}$ = 12 $m^2.g^{-1}$;

Poussières minerales: $\sigma_{d\ ext}$ = 1 $m^2.g^{-1}$; Sulfates sur poussières: $\sigma_{sulfate/d\ ext}$ = 8 $m^2.g^{-1}$.

minéral		*sulfates*		*BC*	
$\sigma_{d\ ext}$ ($m^2.g^{-1}$)	références *observations*	$\sigma_{SO4\ ext}$ ($m^2.g^{-1}$)	références *observations*	$\sigma_{BC\ ext}$ ($m^2.g^{-1}$)	références *observations*
0.2 ~ 0.4 1.0 ~ 2.0	Tegen and Fung, 1995 *(1-10 µm)* *(<1 µm)*	2.5 ~ 7.5	Charlson et al., 1992	14 ~ 25	Liousse et al.,1993 (milieux urbains)
0.9 ~ 1.3	Clarke et al., 1996	5 ~ 16	Clarke et al., 1996	9	Seinfeld et Pandnis, 1998
		5 ~ 12	Chin et al., 1996	5 ~ 22	Martins et al., 1998
0.08 ~ 1.70 0.09 ~ 4.77 0.14 ~ 3.29	Haywood et al., 1999	4.9 ~ 6.0	Schwartz, 2002 (*sulfates d'ammonium*)	5.0 ~ 9.3	Lavanchy et al., 1999 *(zone rurale continentale)*
				11	Cooke et al., 1999
0.017 ~ 1.303	Collins et al., 2002	7.35 ~ 12.2	Penner et al., 2002 (*ref. citées*)	10	Tegen et al., 2000
~ 0.3	Clarke et al., 2004			8.9 ~ 10	Penner et al., 2002 *(ref. citées)*

Tableau 4.III – Sections spécifiques d'extinctions pour les poussières minérales ($\sigma_{d\ ext}$), les sulfates ($\sigma_{SO4\ ext}$) et les black carbon ($\sigma_{BC\ ext}$), d'après la littérature.

- validation des AOT issues du modèle à l'aide des données du réseau AERONET : AOT et exposant d'Angström

Nous calculons toutes les 3 heures, du 27 Avril au 02 Mai 2005 à 00TU, les AOT caractéristiques des colonnes d'aérosols au zénith des lieux d'étude selon la formule simple : $\mathrm{AOT} = \sum_{j=1}^{4} \sigma_{j\mathrm{ext}}.\mathrm{C}_j$ où l'indice j représente chacun de quatre aérosols de notre panel (Poussières minérales, sulfates capturés sur les poussières, SO_4^{2-}, BC). Nous faisons apparaître, dans les chronologies des AOT, la partition des AOT propres à chacun des quatre aérosols pour estimer celui (ou ceux) qui domine l'extinction du rayonnement à venir

jusqu'au sol. Ces AOT simulées sont comparées aux séries chronologies des AOT et des exposants d'Angström fournies par le réseau de photomètres AERONET.

Ce type d'exercice a été mené à la suite de la campagne ACE-Asia réalisée au printemps 2001. Tsai et al., [2004] ont effectués des mesures aériennes afin d'en déduire les répartitions spatiales des concentration d'aérosols regroupés en deux catégories de tailles sur- et sous-micronique. Pour distinguer globalement ces deux classes d'aérosols les auteurs ont employés des surfaces spécifiques de diffusion (*scattering*) fixées respectivement à 0.8 ± 0.4 $m^2.g^{-1}$ et 3 ± 1 $m^2.g^{-1}$. Une étude distinguant comme nous quatre aérosols : minéral, sels marins, SO_4^{2-} et BC a été mené pour comparer modèles et mesures [Takemura et al., 2003]. Dans cette étude, les résultats proposés calculent les moyennes quotidiennes des effets radiatifs sur des extensions géographiques aux dimensions des principales mers de Chine, du Japon, et du Pacifique Nord. De même, des comparaison de modèle avec des données de photomètre et de satellites ont servi à quantifier l'impact global, à l'échelle de l'hémisphère Nord, des émissions d'aérosols Est-asiatique produits au printemps 2001 [Chin et al., 2004]. Nous nous distinguons donc de ces travaux dans le sens où notre ambition n'est pas de comparer des moyennes d'épaisseurs optiques à de larges échelles temporelles et spatiales mais de confronter directement les valeurs en temps réel mesurées aux périodes diurnes en chaque site, à nos résultats à 3 heures d'intervalles.

Différentes méthodes photométriques sont possibles pour déterminer les épaisseurs optiques. Certaines valeurs sont déduites d'appareils installés au sol (réseaux AERONET, SKYNET etc), d'autres sont déduites d'observations satellitaires et les corrélations nécessaires entre ces deux approches font l'objet d'études spécialisées [Sundar and Wang, 2004]. Ces auteurs montrent la proximité des résultats obtenus, sans pour autant, bien sur, qu'il y ait concordance parfaite (corellation linéaire entre 85 et 95% en zone aride du Nord de la Chine). Nous exploitons, ici, exclusivement des données acquises par des photomètres installés en divers sites de surface. Nous reprenons dans ce paragraphe les données AERONET directement accessibles en ligne et que nous avions déjà employées dans le but de diagnostiquer la présence d'événement de poussière au printemps 2005 (§ 3.2.3): Dalanzadbag en Mongolie, Beijing, Liangning au Nord Est de la Chine (*fig. 3.3*), Gwangju en Corée du Sud et Osaka au Japon.

Les données d'épaisseurs optiques sont proposées sous 3 niveaux de qualités différentes : les niveaux 1.0, 1.5 et 2.0. Bien qu'il soit préconisé de publier des résultats basés sur les valeurs de niveau 2.0 (T.F. Eck, communication personnelle), nous avons sciemment

pris le parti (et le risque) d'exploiter directement les données « brutes » d'AOT de niveau 1.0 car les post-traitements des niveaux 1.5 et 2.0 ont tendance à lisser les variations horaires des AOT en supprimant certaines valeurs importantes (qui pourraient être dues à des nuages) ce qui nous éloignerait de notre idée de rendre compte "en temps réel" des transports des aérosols asiatiques. Par souci de lisibilité, nous n'avons pas représenté l'ensemble des AOT établies pour chacune des quatre ou cinq longueurs d'onde détectées par les photomètres, mais utilisé les AOT à 500 nm (Dalanzadbag, Liangning) ou 675 nm (Beijing, Gwangju, Osaka) à chaque pas de temps. Cela dit, pour ne pas perdre d'information sur la nature de l'aérosol via sa réponse spectrale, nous traçons en complément de l'AOT moyenne, l'exposant d'Angström caractéristique de l'ensemble de l'aérosol observé à chaque instant.

La sensibilité spectrale de l'AOT renseigne sur les tailles moyennes des aérosols qui contribuent à cette AOT, c'est pourquoi notre étude exploite l'exposant d'Angström α [Angström, 1964] défini comme une grandeur sans dimension proportionnelle aux épaisseurs optiques produites par l'aérosol à deux longueurs d'onde distinctes suffisamment éloignées l'une de l'autre. Par définition :

$$\alpha = \ln\left(\frac{\tau_{\lambda_1}}{\tau_{\lambda_2}}\right) \Big/ \ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)$$

où τ_{λ_1} (respectivement τ_{λ_2}) est l'épaisseur optique réalisée à la longueur d'onde λ_1 (resp. λ_2).

Nous avons utilisé les exposants d'Angström calculés par AERONET pour les longueurs d'onde λ_1 =500 nm et λ_2 = 870 nm.

Le plus souvent, lorsque α tend vers zéro, la taille des aérosols s'inscrit dans les modes d'accumulation et le mode grossier, et inversement quand α vaut quelques unités la taille des aérosols tend vers des modes très fins, voire des dimensions moléculaires. A titre d'illustration, une couche d'aérosols désertiques expulsée du continent Nord-Africain est repérée en altitude à la verticale de la Grèce par un exposant d'Angström moyen de 0.4 [Gerasopoulos, 2003]. De façon générale, les observations AERONET fournissent des exposants d'Angström inclus dans un intervalle de 0.1 à 0.7-0.9 pour des particules minérales, depuis les zones désertiques jusqu'aux mélanges avec d'autres aérosols, et dans un intervalle de 1.2 à 2.5 pour des aérosols de pollution urbains [Dubovik et al., 2002 ; Smirnov, 2002]. Comme valeurs intermédiaires, α = 0.95-1.02 encadrent les valeurs moyennes établies en décembre 2000 sur l'île d'Amami-Oshima à la pointe Sud du Japon, indiquant par là un mélange de petites et grosses particules, tandis qu'en présence d'aérosol désertique, l'exposant d'Angström moyen tombe à 0.66 [Sano et al., 2003].

➢ Beijing

La *figure 4.25* présente, sur les mêmes échelles pour les observations et les simulations, les historiques des épaisseurs optiques calculées à Beijing ainsi que les AOT et valeurs des exposants d'Angström α observés à la verticale de cette ville.

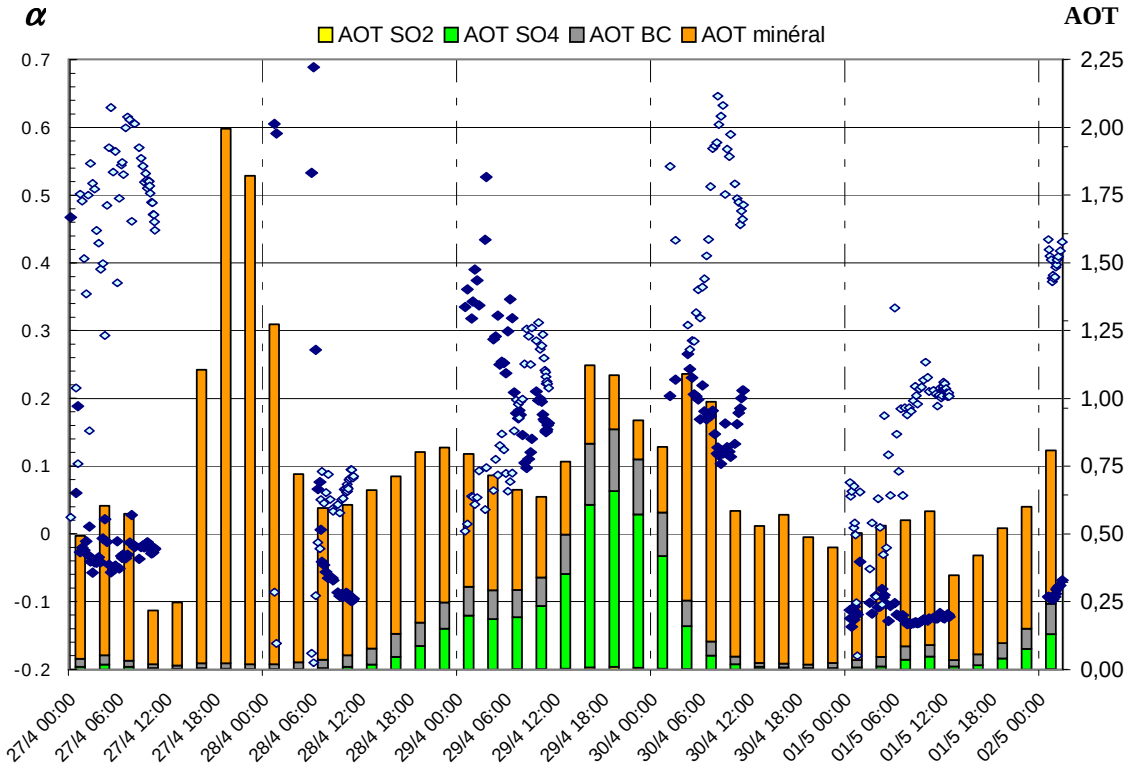


Figure 4.25 – Historique des AOT calculées à Beijing du 27 Avril au 02 Mai 2005 à 00TU, avec la partition des aérosols impliqués dans ces valeurs, orange : minéral ; gris : BC ; vert : sulfates ; jaune: sulfate sur minéral (très peu marqué sur Beijing).
Observations AERONET à Beijing: les AOT sont les symboles bleus pleins (échelle de droite) et les exposants d'Angström α sont les symboles bleus clairs (échelle de gauche).

Les AOT simulées sur Beijing valent, en moyenne sur 5 jours, τ_{Beijing} = 0.65 ± 0.31 (moyenne ± écart-type), avec un minimum d'épaisseur optique à 0.18 avant le premier épisode de tempête de sable et un maximum à 1.67 le 27 Avril à 18TU (02 LT le 28 Avril) pendant cette tempête. Pour le printemps 2001, l'épaisseur optique à 500 nm était en moyenne 0.68 ± 8% ou 0.81 ± 94% selon la méthode de calcul utilisée [Xia et al., 2005]. Nos valeurs s'inscrivent exactement dans les moyennes mensuelles d'épaisseurs optiques à Beijing déterminées, pour Avril-Mai et entre 1980 et 1994, par Qiu and Yang [2000] : 0.58 – 0.59.

Sachant que notre étude comporte, toutes choses égales par ailleurs, plus d'événements de tempêtes de sable que l'étude citée, nos résultats se situent dans les valeurs hautes des AOT sur Beijing.

Les mesures AERONET étant par essence des observations diurnes, on ne dispose de points de contrainte que pendant environ la moitié des journées étudiées. Pour autant, les évolutions sur la douzaine d'heures de jour local (de 00TU à 12 TU approximativement) suivent jour après jour les profils des AOT que nous avons calculés. Les valeurs observées et simulées du 28 et du 30 Avril correspondent entre elles en fin de journée mais les données AERONET du 29 sont supérieures à nos calculs. Les épaisseurs optiques inférieures à 0.6, avant et après les transports de poussière, correspondent très bien avec les données AERONET de Beijing.

Les exposants d'Angström observés sur Beijing nous permettent de constater que la partition calculée des aérosols censés contribuer aux AOT heures après heures sont elles aussi du domaine du plausible. Dans les heures qui précèdent l'arrivée de la 1^{ere} tempête de sable, l'épaisseur optique entre 0.2 et 0.6 montre la composition d'un air plutôt peu pollué et les valeurs de α indiquent que cette pollution est mixte anthropique/minérale, mais dominée malgré tout par cette dernière espèce. 24 heures plus tard, les exposants d'Angström sont négatifs: c'est l'aérosol grossier qui domine, preuve incontestable du passage de la pollution minérale comme nous le simulons. Le 29 et plus encore le 30 Avril, la recrudescence des contributions anthropiques que nous calculons dans les AOT est manifeste et soulignée par l'accroissement significatif de α. Enfin, après le deuxième passage de poussières, on retrouve les 1 et 2 Mai, les caractéristiques optiques d'un aérosol mélangé (α dispersé entre -0.2 et +0.5).

En conclusion, notre restitution simplifiée de la caractérisation optique du cycle des aérosols naturels et anthropiques sur Beijing nous semble tout à fait pertinente, au moins dans le contexte de notre cas d'étude.

- Dalanzadgab

Ce site de mesure se situe au Sud de la Mongolie, à proximité des zones sources des déserts de Gobi. Il n'est donc pas surprenant de constater que l'épaisseur optique que nous calculons à cet endroit soit caractéristique d'un aérosol d'origine minérale (*figure 4.26*).

Nos calculs d'épaisseur optique suivent correctement les variations des valeurs observées pour le 1er événement des 27-28 Avril. La signature spectrale le 28 (α<0), montre

qu'il s'agit bien d'un transport de particules minérales. Nous avons, par contre, sous-estimé la charge d'aérosol minéral car l'épaisseur optique observée atteint un pic représentant le triple de celui que nous calculons à quelques heures près. A ce propos, signalons que, c'est la proximité géographique des sources qui rend très difficile une synchronisation correcte des extrema calculés avec ceux qui sont observés. Ainsi, le site de mesure peut détecter des épiphénomènes que notre maillage spatio-temporel ne peut pas prendre en compte.

Nous rendons compte de façon très correcte d'un épisode de transports de poussières le 29 Avril. Les journées suivantes montrent de fortes variations des AOT observées que nous retrouvons correctement en terme d'ordre de grandeur, mais de façon plus lissée dans le temps, avec une composante majoritairement minérale en milieu de journée en temps local.

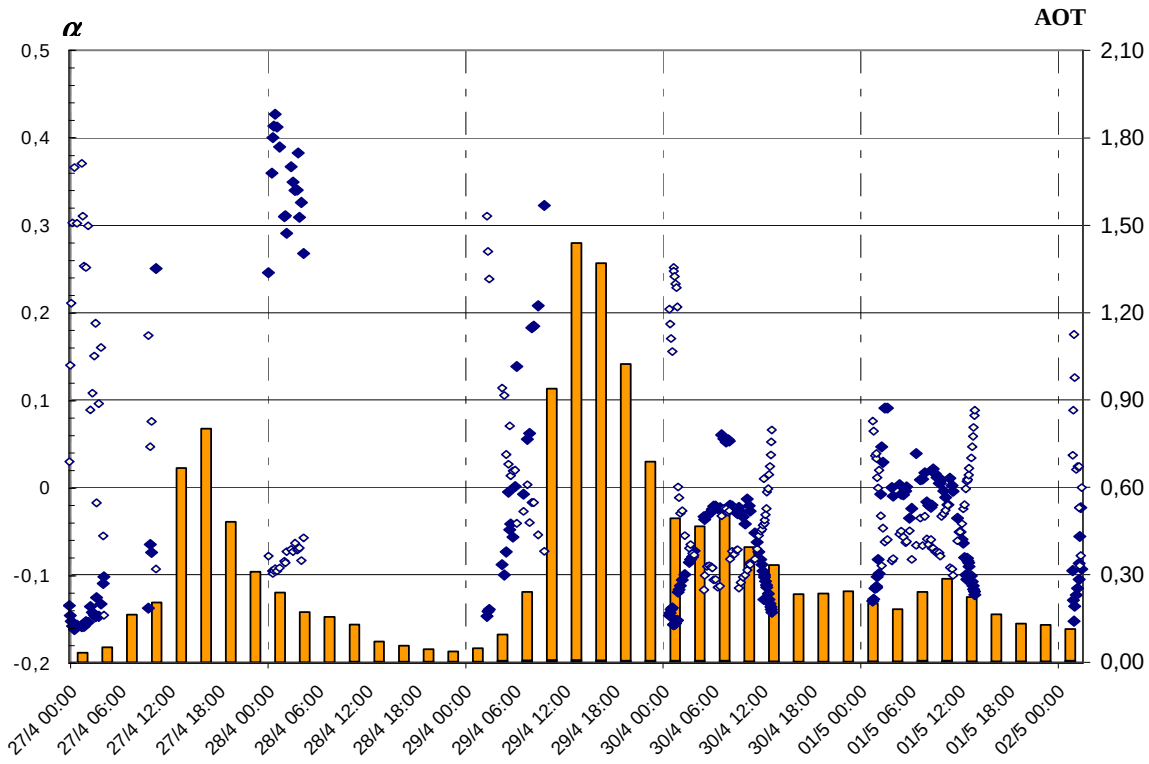


Figure 4.26 – Idem 4.25, Historique des valeurs AOT et α à Dalanzadgab (Mongolie)

- Liangning

Liangning (aussi orthographié Liaoyang), ville chinoise au Nord de la Baie Bohai, est une ville à la fois polluée par des émissions anthropiques locales et exposée aux transports de poussières provenant des désert de l'Est-Gobi et tout particulièrement des déserts d'Horqin , d'Otindag et d'Hulun Buir (*fig. 2.10*). L'analyse de la *figure 4.27* montre pour les journées du 27 et du 28 des épaisseurs optiques calculées selon une tendance contraire aux observations.

Si les exposants d'Angström suggèrent une pollution dans un mode grossier, les AOT que nous calculons semblent avoir une journée de décalage avec celles qui sont observées. Soit nous sous-estimons un transport de poussière survenu le 27, ce qui n'est pas impossible d'après une image MODIS (non présentée) et bien que l'image TOMS de ce jour ne présente aucun AI pour cette région, soit le transport de poussière du 28 Avril est calculé comme passant trop au Nord par rapport au transport réel, ce qui est possible là encore au vu de la photographie satellite de la *figure 4.28*, soit enfin les rares AOT de niveau 1.0 (entre 08:58 TU et 09:52 TU) sont biaisées par le passage des nuages et ne représentent pas forcément les AOT de toute la journée du 28.

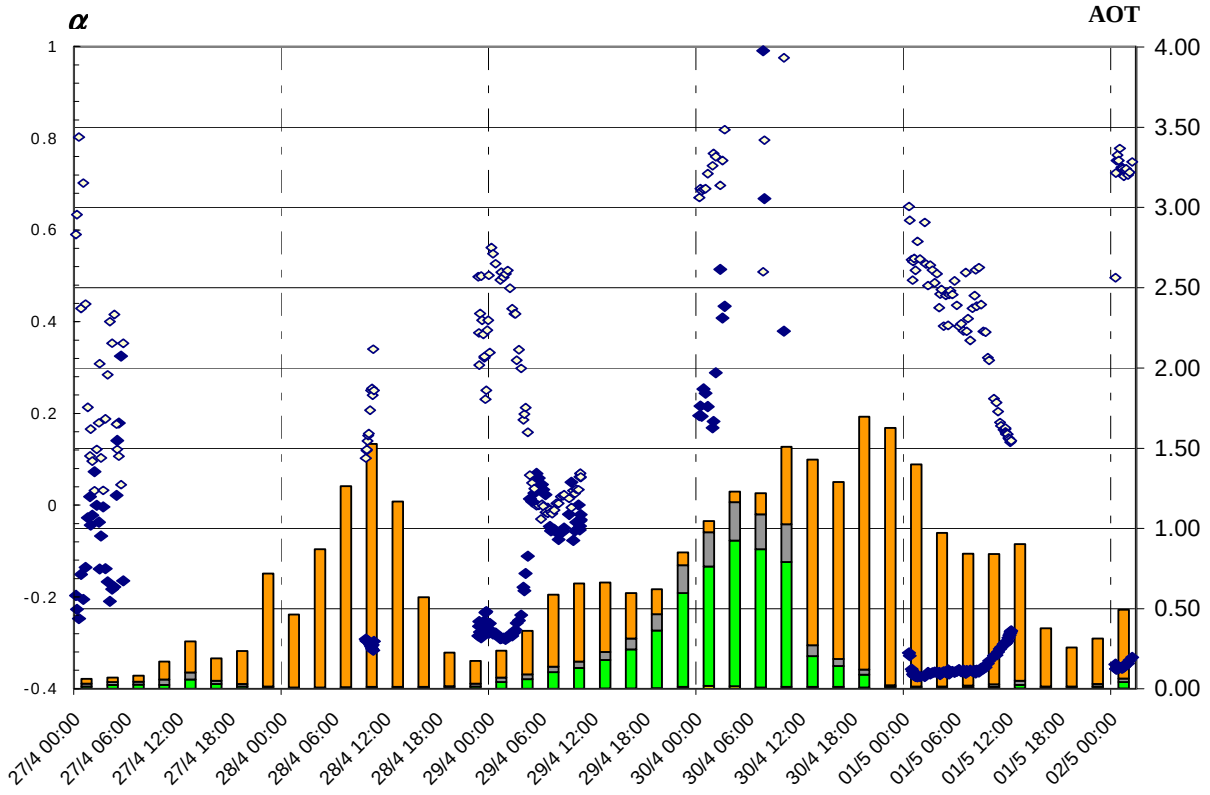


Figure 4.27 – Idem 4.25, Historique des valeurs AOT et α à Liangning (Chine)

Les journées du 29 et du 30 Avril sont en revanche beaucoup mieux documentées et nous constatons la convergence de nos calculs d'AOT avec les mesures, aussi bien en valeurs absolues qu'en évolution chronologique. Il est fort probable que nous sous estimions la charge en poussières minérales le 30 car nous n'obtenons que la moitié du pic d'AOT observé et nous savons que nous sous estimons pour ce jour là les émissions de poussières désertiques au Nord Ouest de Liangning. Ce "retard de phase", déjà diagnostiqué, explique pourquoi nous

surestimons à contrario l'AOT 24 heures plus tard en attribuant de plus à celle-ci une cause minérale alors que les exposants d'Angström montrent la présence d'aérosols plus fins. Les résultats de simulation pronostiquent une intrusion conséquente de sulfates le 30 Avril, mais nous ne pouvons aller plus loin ici quant à leur participation relative à l'épaisseur optique, puisque nous sous-estimons certainement la contribution du mode minéral au même moment.

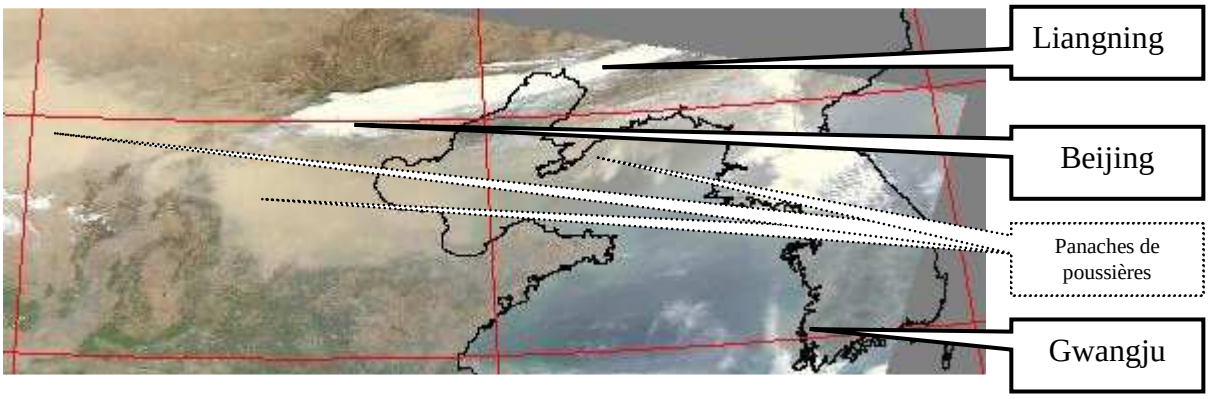


Figure 4.28 –Extrait d'image satellite MODIS réalisée le 28 Avril 2005 à 03TU. Localisation des sites Aeronet de Beijing, Liangning et Gwangju.

En conclusion, les amplitudes des AOT simulées sont comprises entre 0.06 et 1.69 (en moyenne : $\tau_{\text{Liangning}} = 0.73 \pm 0.49$) et sont conformes aux observations en moyenne sur 5 jour. Par exemple, Xia et al. [2005] estiment à 0.60 ± 63 % l'AOT moyenne au printemps 2001 à Shenyang, ville à moins de 100 km au Nord-Est de Liangning. Si les ordres de grandeurs moyens sont corrects, en revanche nos résultats pâtissent a priori de désynchronisations par rapport aux événements réels, ce qui incriminerait en dernier ressort la qualité du cadastre des sols pour les déserts les plus proches de Liangning.

- Gwangju

Nous rappelons aussi, sur la *figure 4.28*, la position géographique de la ville de Gwangju (aussi orthographié Kwangju) pour laquelle les graphiques d'AOT et de exposants d'Angström sont reportés *figure 4.29*. Le rôle des ions SO_4^{2-} est manifeste dans l'AOT simulée (avec nos choix de surfaces spécifiques d'extinction) puisqu'ils contribuent en moyenne à 62 % de l'AOT totale moyenne $\tau_{\text{Gwangju}} = 0.42 \pm 0.16$. On note que les BC participent également à chaque instant à l'AOT, le caractère très absorbant des BC, même par rapport au SO_4^{2-} est contrebalancé par les concentrations très supérieures des seconds par rapport aux premiers.

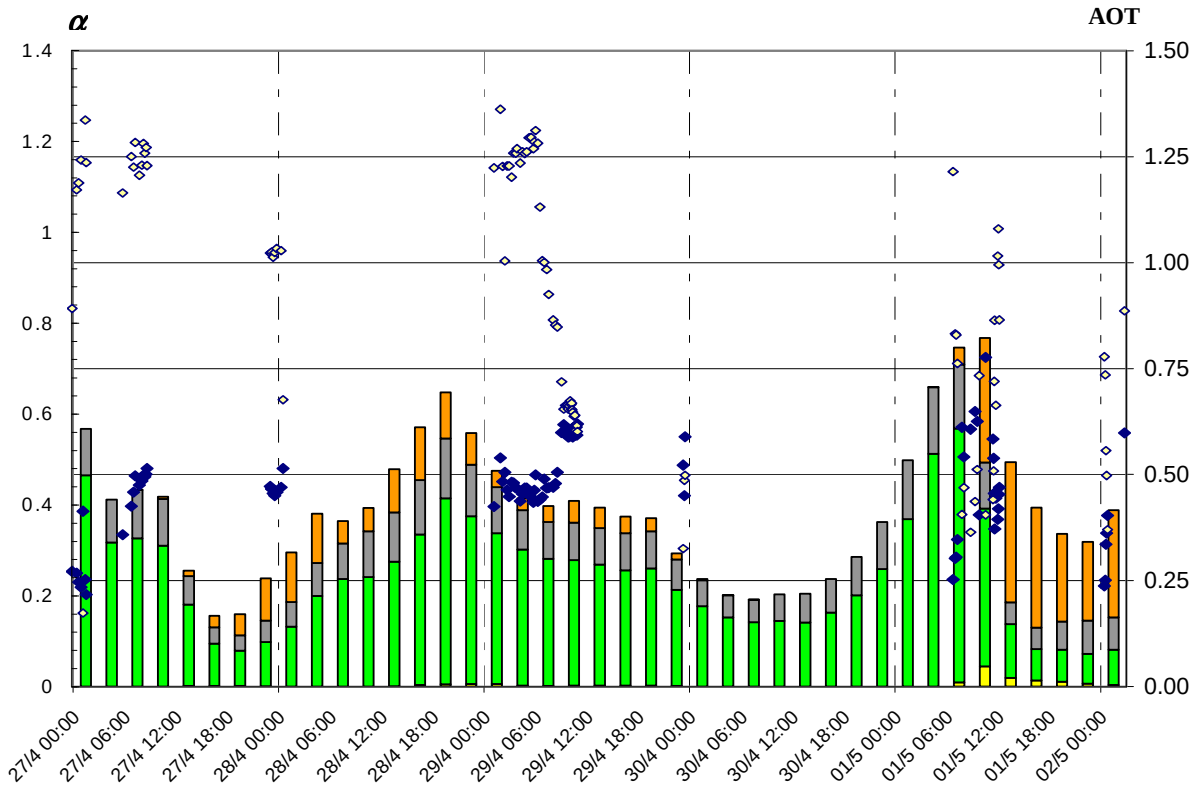


Figure 4.28 – Idem 4.25, Historique des valeurs AOT et α à Gwangju (Corée)

Les valeurs des AOT horaires sont conformes entre elles tant en ce qui concerne les valeurs elles-mêmes, que les évolutions temporelles. De plus, les deux épisodes de poussières sont, eux aussi, fidèlement interprétés par nos calculs puisque l'aérosol minéral n'apparaît contribuer de façon significative aux AOT qu'aux dates attendues, et que les exposants d'Angström diminuent dans l'ensemble (la variabilité horaire restant importante) à partir du 29 Avril puis à partir du 1 Mai, dates à partir desquelles nous simulons des arrivées de poussières désertiques.

Ces remarques sont également applicables, dans l'ensemble, aux simulations à Osaka (*figure 4.29*) à l'exception de la tendance observée à partir du 1 Mai pour laquelle nous ne disposons pas de suffisamment de données d'observations pour critiquer nos propres modélisations. On calcule une AOT moyenne sur les 5 jours de $\tau_{\text{Osaka}} = 0.33 \pm 0.18$ avec des valeurs comprises entre des extrêmes valant 0.09 et 0.77. Si l'on en croit nos estimations, les sulfates contribuent à hauteur de 73 % à l'AOT moyenne sur 5 jours. La période de

contribution majeure des poussières minérales (29-30 Avril) aux AOT montre une journée de retard par rapport aux pics calculés sur le continent, ce décalage s'interprétant comme la durée nécessaire au nuage de poussière pour atteindre le Sud du Japon. La permanence de la pollution anthropique calculée à Osaka par rapport à l'intermittence de la pollution naturelle s'explique par le fait que les aérosols minéraux effectuent des transports à longues distances alors que les polluants anthropiques sont produits localement à flux constant.

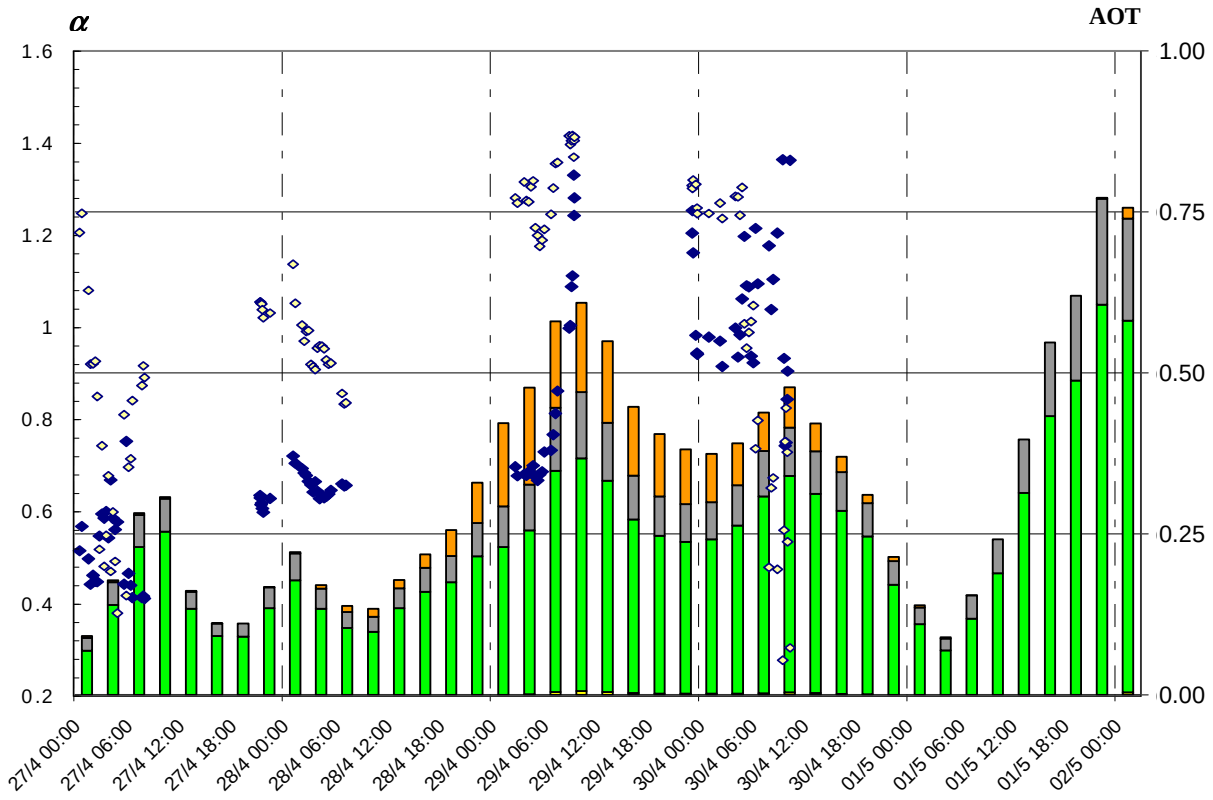


Figure 4.29 – Idem 4.25, Historique des valeurs AOT et α à Osaka (Japon)

Nous avons pu bénéficier de données d'observation d'épaisseurs optiques et d'exposants d'Angström à Toyama en dehors du réseau AERONET. A notre demande, le professeur Kazuma Aoki, qui participe au réseau d'observations SKYnet (http://skyrad.sci.u-toyama.ac.jp/index.html) nous a transmis ses données relatives à notre période de simulation.

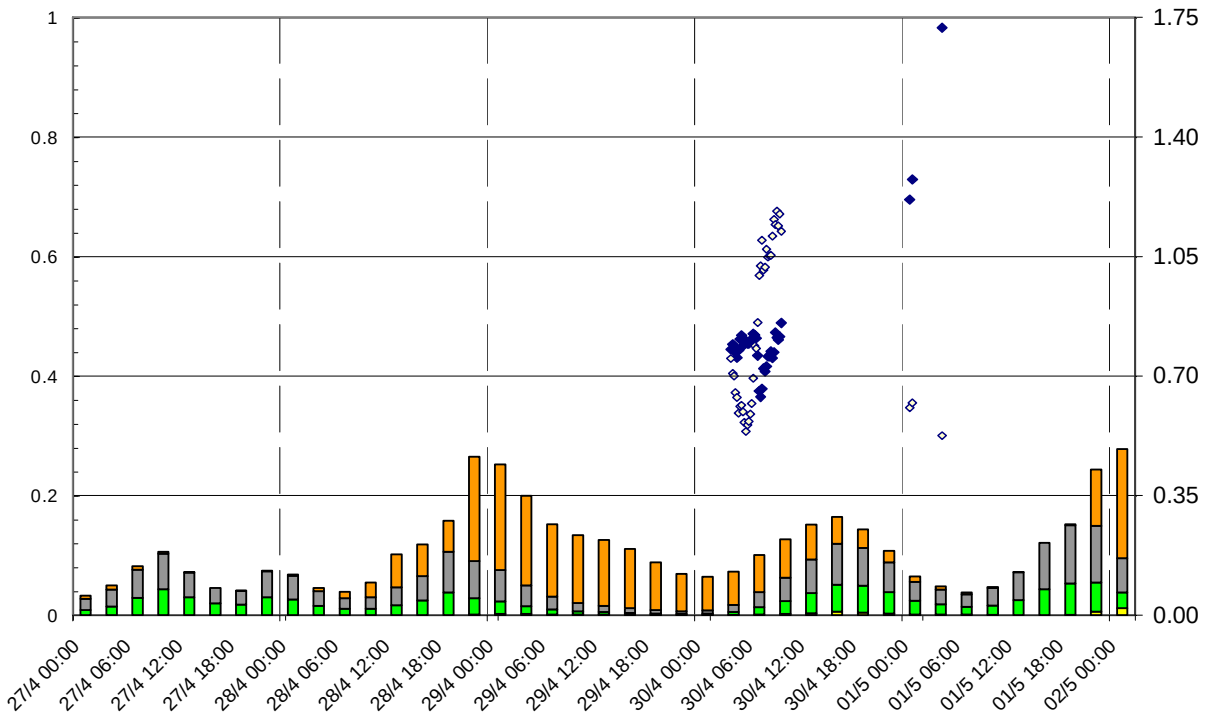


Figure 4.30 – Idem 4.25, Historique des valeurs AOT et α à Toyama (Japon)

Malheureusement, comme le regrette aussi le Pr. Aoki, le système d'observation n'a été opérationnel que pendant la journée du 30 Avril, avec quelques mesures en plus le 1er Mai. Nous sommes donc réduits à ne comparer nos calculs d'AOT qu'aux données parcellaires de ces seules journées (*figure 4.30*). Il apparaît que nous sous-estimons notablement les AOT pour les deux journées documentées. Ces valeurs d'AOT, associées aux exposants d'Angström mesurés, suggèrent plusieurs hypothèses: Avec $0.3 < \alpha < 0.7$, la pollution du 30 Avril contient sans doute des poussières mais aussi des polluants anthropiques, alors que le 1er Mai, l'AOT observée, proche de 1.75, semble due à une dominante minérale plus marquée, explication que les faibles quantités de poussières que nous calculons ne permettent pas de retrouver. Paradoxalement, les données d'observation de surface (§ 3.2.4 – *fig. 3.15.c*) montrent qu'il y en a très peu de poussières en surface ! Une telle opposition entre les indications des mesures nous laisse perplexe car elles supposent que des quantités de poussières aient été transportées en altitude sans qu'on en voie trace notable en surface. Le passage du 30 Avril apparaît un peu mieux décrit en tant que mélange de polluants par les exposants d'Angström, mais nous calculons une AOT de seulement 0.2 ~ 0.3, plus proche des valeurs moyennes observées sur la région au printemps (0.44 à Niigata 38°N, 139°E, au Nord

de Toyama, [Aoki and Fujiyoshi , 2003]) que de 0.8, ordre de grandeur des mesures in situ de ce jour.

Pour conclure nos comparaisons entre les mesures et les calculs RAMS pour les sites éloignés des sources terrigènes, mais proches des sources de polluants anthropiques, nous obtenons, pour Gwangju et Osaka, des résultats réalistes des grandeurs optiques des transports d'aérosols : tant pour l'exposant α (et donc indirectement pour la nature des aérosols) que pour les évolutions temporelles des ordres de grandeur des épaisseurs optiques mesurées. Nous pouvons ainsi tracer à grands traits les contributions relatives en BC et sulfates sur les 3 villes situées en Corée et au Japon: celles-ci seraient du même ordre de grandeur à Toyama (respectivement 0.05 et 0.04 en moyenne) mais nous n'avons pu valider ces valeurs. Les contributions des BC et des sulfates aux AOT sont plus nettement démarquées à Osaka, où les sulfates contribuent, en moyenne, à une AOT 4 fois supérieure à celle des BC (0.24 par rapport à 0.06). Ce rapport en faveur des sulfates se vérifie aussi à Gwangju, avec, en moyenne sur 5 jours, $AOT_{SO4}/AOT_{BC} = 0.26/0.09 \sim 3$. Ces estimations se situent entre celle de Aoki et al., [2005] : $AOT_{SO4}/AOT_{BC} = 0.075/0.04 \sim 19$, valable pour l'ensemble du Japon, et les estimations d'un ordre de $AOT_{SO4}/AOT_{BC} \sim 2$, établies en Avril-Mai pour les villes de Tsukuba, Niigata et Sapporo, par Takemura et al. [2001]. Enfin, nous calculons qu'à Toyama, même en présence d'un événement de poussières minérales transportées depuis le continent, l'AOT totale moyenne est au moins pour moitié d'origine anthropique, contribution anthropique qui est encore bien supérieure à Gwangju et Osaka, ce qui rejoint le bilan global de Takemura et al. [2003] relatif à la zone ACE-Asia : […] *Therefore, the results suggest that about half of the total optical thickness in this area is due to anthropogenic aerosols even when the strong Asian dust events occur* […].

4.6 Les dépôts secs des différents polluants naturels et anthropiques

Le cycle des aérosols et des polluants que nous étudions en Asie Orientale a été caractérisé, dans les chapitres et paragraphes précédents, sous ses aspects chronologiques: émissions, transports et transformations. Le cycle atmosphérique de ces diverses espèces s'achève sous forme de dépôt en surface.

Nous calculons les dépôts cumulés des poussières minérales sur les zones 1, 2 et 3 que nous avions délimitées en tant que zones sources au paragraphe 3.2.3. Le *tableau 3.I* présentait les quantités de poussières désertiques émises entre le 27 Avril et le 02 Mai 2005 par ces secteurs géographiques. Nous proposons maintenant les quantités déposées à l'issue de ce même laps de temps, sur les mêmes zones : *tableau 4.III*.

zone	localisation des 3 zones sources	quantité totale déposée en 5 jours	% en masse déposée (originaire de toute la simulation) par rapport à la masse émise
1	(40-45N, 100-109E)	0.33	26 %
2	(42-47N, 110-119E)	1.04	87 %
3	(38-50N, 94-119E)	3.39	62 %

Tableau 4.III : grandeurs caractéristiques, en Mégatonnes, des quantités cumulées d'aérosol minéral déposées sur les zones 1, 2 et 3 du 27/04/05 (00TU) au 02/05/05(00TU)

Le calcul du pourcentage de masse de poussières désertiques déposée sur chaque zone, relativement à la masse qui en est issue durant la même période, doit être lu avec précaution. En effet, une part non quantifiée des particules minérales déposées sur chaque zone provient obligatoirement de cellules émettrices du cadastre qui sont situées à l'extérieur de ces sources. Autrement dit, il ne faut pas penser que 74 % des poussières émises par la zone 1 ont quitté la zone 1 … En réalité il s'agit d'un budget global qui montre que la zone 1 est une zone "globalement" source, à l'évidence, puisqu'elle "reçoit" environ 4 fois moins qu'elle ne

"donne", alors que la zone 2 a une part notable de ses émissions qui est compensée par une rechute directe de ses propres émissions sur zone mais aussi par l'apport de particules issues d'autres régions. La zone 3, qui englobe tout le cadastre d'émission des déserts de Gobi, est le lieu du dépôt sec de 3.39 Mt de poussières minérales et cela représente 62 % de ce qu'elle avait émis. On peut penser que, du fait que le dépôt en zone 3 est en partie dû à des masses transportées depuis les régions les plus au Nord Ouest de la Chine, plusieurs Mégatonnes de poussières émises depuis la zone 3 ont été transportées vers la partie la plus orientale de la zone simulée. Nous proposons une vue d'ensemble des masses d'aérosol minéral déposées au bout de 5 jours sur la *figure 4.31.a.*, où nous constatons, d'une part, les dépôts les plus importants sur les zones sources, et d'autre part, une extension de dépôts cumulés supérieurs à 0.1 $g.m^{-2}$ jusqu'au Japon à l'Est et Shanghai au Sud. Seules des analyses lagrangiennes des masses d'air porteuses de minéral, avec des rétrotrajectoires « avant » (calculées depuis les sources du Nord Ouest) et « arrières » (calculées depuis les zones de dépôts) nombreuses et détaillées, permettraient de mieux cerner les relations zone source/ zone de dépôt, sachant qu'à de telles distances des analyses minéralogiques sont obligatoires pour certifier les calculs des masses transportées.

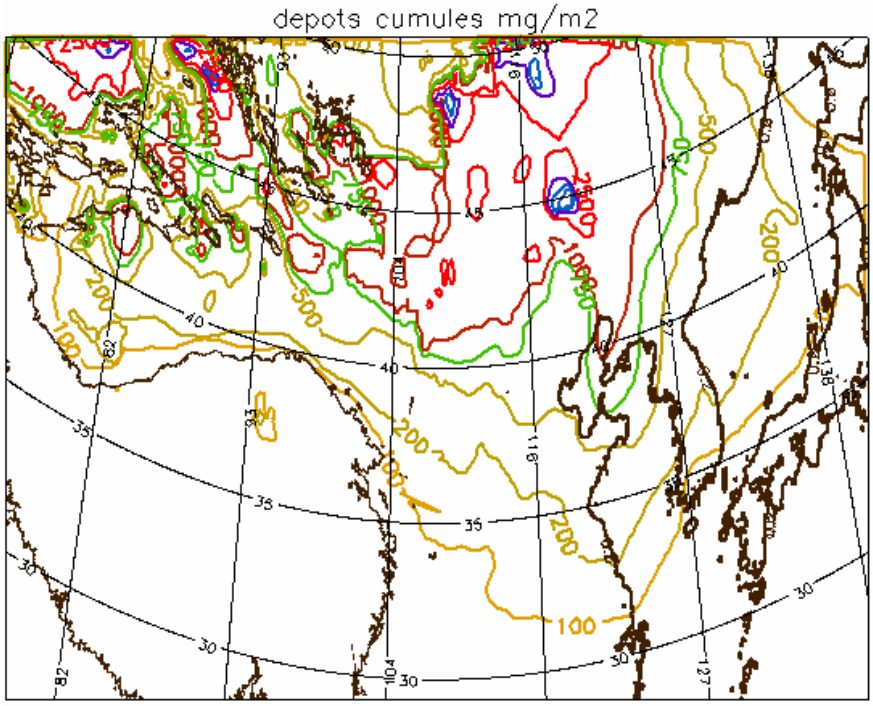


Figure 4.31.a – Dépôts cumulés de poussières désertiques entre le 27 Avril et le 02 Mai (00 TU). Intervalles : 100, 200, 500, 750, 1000, 2500,5000, 7500, 10000 $mg.m^{-2}$.

Les dépôts cumulés sur 5 jours des polluants anthropiques sont représentés sur les figures *4.31.b, c* et *d* respectivement pour le SO_2, le SO_4^{2-} et les BC.

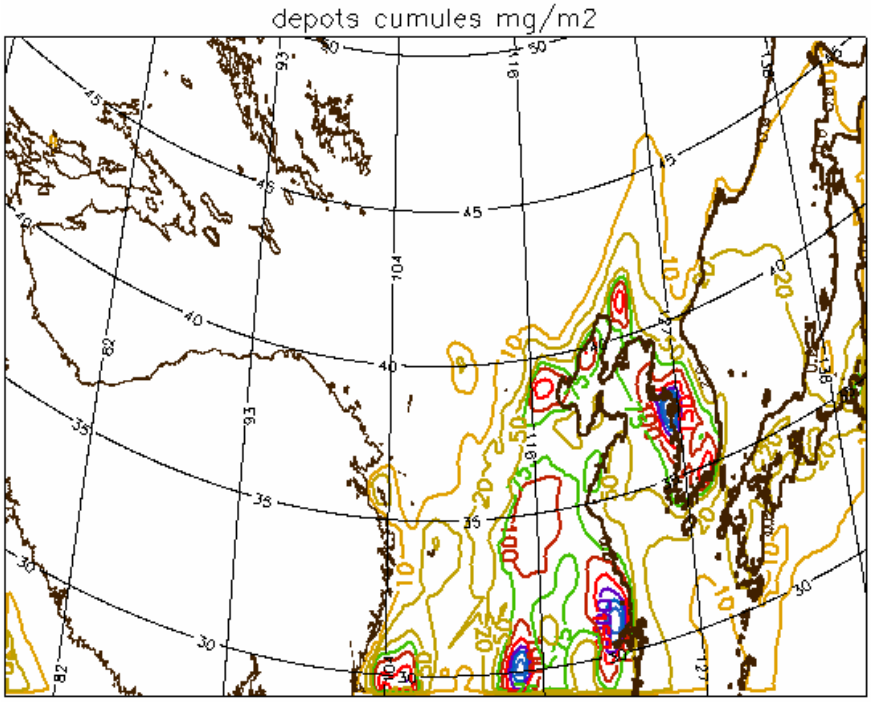


Figure 4.31.b – Dépôts cumulés de SO_2 entre le 27 Avril et le 02 Mai (00 TU). Intervalles: 10, 20, 50, 75, 100, 150, 200, 250, 300 mg.m^{-2}.

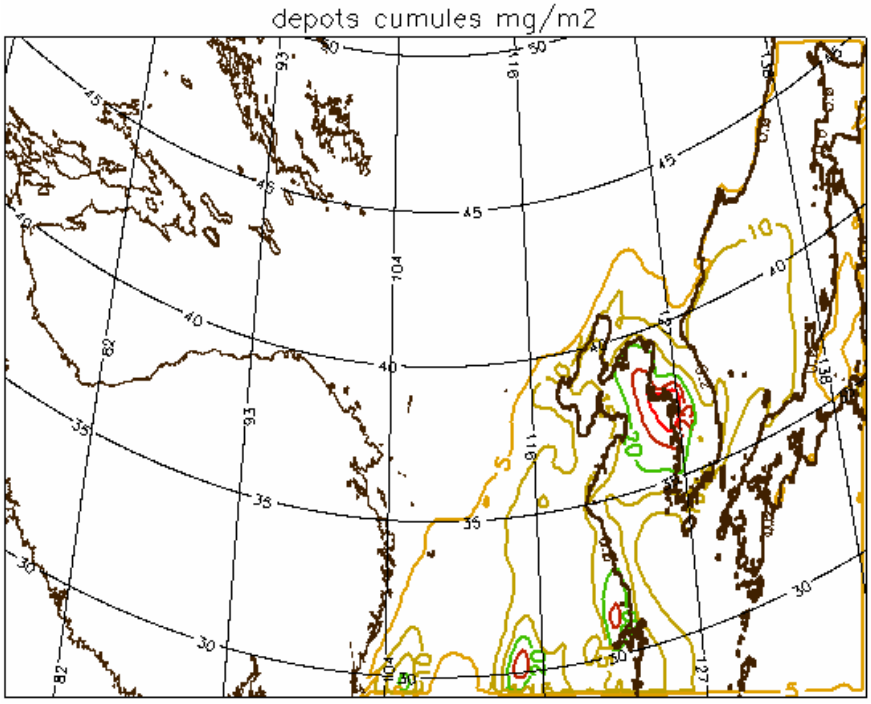


Figure 4.31.c – Dépôts cumulés de SO_4^{2-} entre le 27 Avril et le 02 Mai (00 TU). Intervalles: 5, 10, 15, 20, 25, 30 mg.m^{-2}.

On note que les dépôts de SO_4^{2-} sont d'un facteur 10 inférieurs à ceux de SO_2. Ce rapport de 10 est manifeste en zones sources, c'est-à-dire sur l'ensemble des agglomérations situées à l'Est de la zone étudiée. Les isocontours calculés au Japon, en dehors de la région émissive de Tokyo située au bord droit de la carte, montrent que ce rapport tend vers 2 loin des sources: en ces lieux, la transformation du SO_2 en SO_4^{2-} a eu le temps de s'effectuer en quantité substantielles, et une part importante du SO_2, injecté essentiellement sur le continent, s'est déposé entre-temps. En ce qui concerne les particules carbonées, celles-ci sont également déposées dans la périphérie des centres urbains, selon un rapport de quantité valant entre la moitié et le quart des quantités de sulfates déposées, lorsque l'on s'éloigne des villes (*figure 4.31.d*).

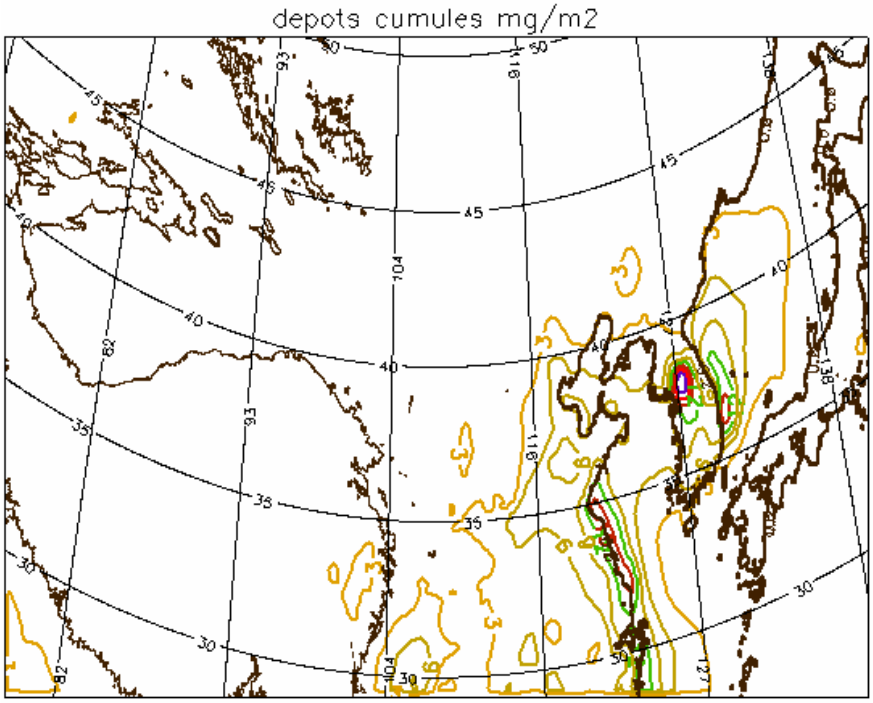


Figure 4.31.d – Dépôts cumulés de BC entre le 27 Avril et le 02 Mai (00 TU). Intervalles: 3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 25 mg.m^{-2}.

Afin d'avoir une vue plus précise des dépôts qui permette de distinguer les quantités des différents polluants arrivées sur les villes proches ou éloignées des sources naturelles et anthropiques, nous présentons le graphique de la *figure 4.32* relatif à sept villes déjà citées et dont nous rappelons rapidement les particularités: Dalanzadgab en Mongolie, proche des déserts de Gobi; Liangning et Beijing, villes soumises à la pollution aussi bien anthropique que désertique; Gwangju, ville côtière assez polluée et exposée aux transports d'aérosols et de

gaz de toutes natures émis par la Chine; Osaka et Toyama, la première ville étant plus polluée par des émissions anthropiques locales que la seconde, mais toutes deux exposées aux dépôts des polluants produits sur le continent.

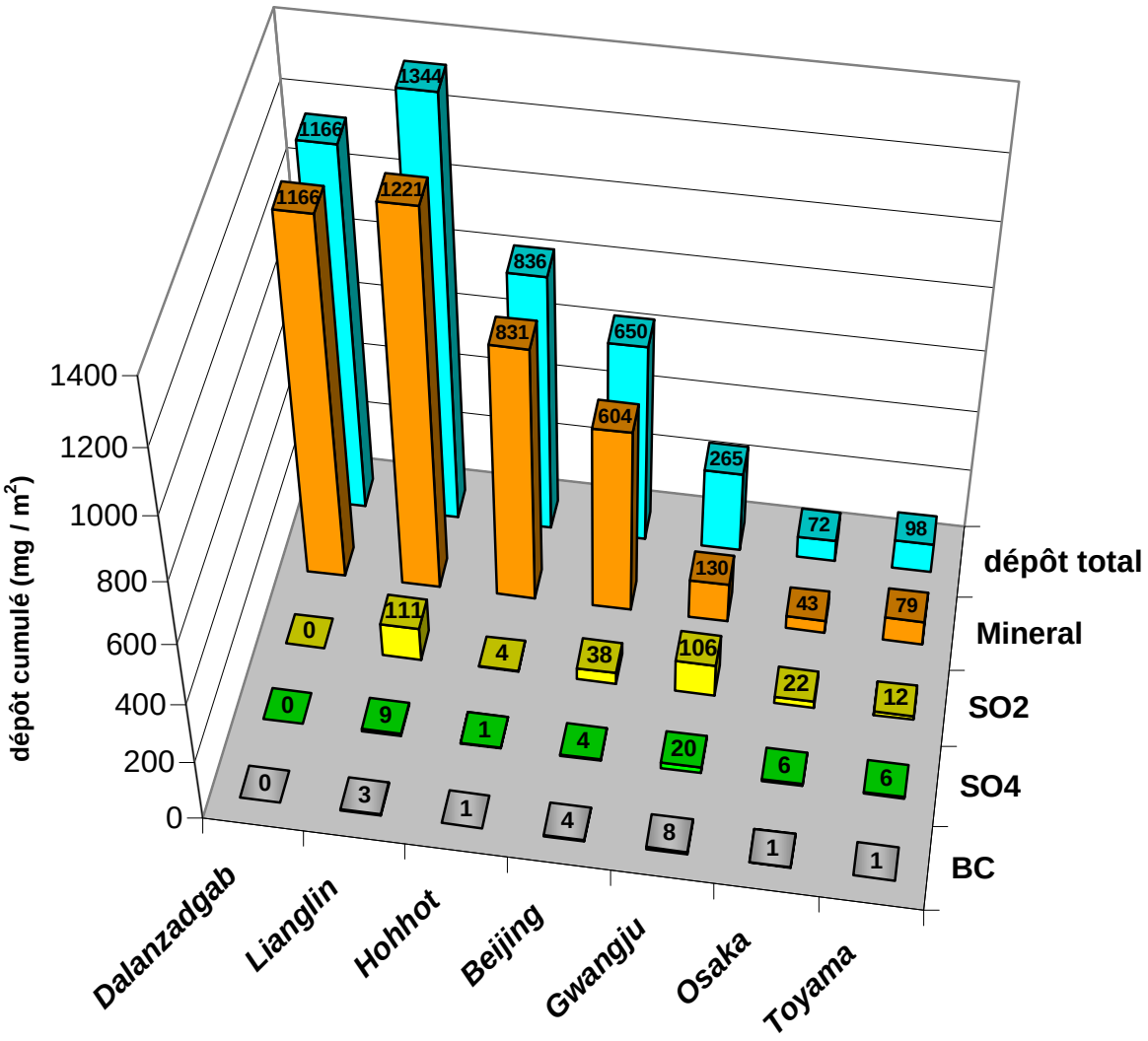


Figure 4.32 – Dépôts cumulés (mg.m^{-2}) des 4 types de polluants étudiés, entre le 27 Avril et le 02 Mai 2005 (00 TU), en 7 villes de l'Asie orientale.

Les dépôts significatifs de polluants, calculés à Dalanzadgab, sont, sans surprise vu la faible densité urbaine et industrielle du site, de nature purement minérale et dépassent au total 1.1 g.m^{-2}. A Liangning, on calcule aussi un important dépôt de sable désertique (plus de 1.2 g.m^{-2} cumulé) mais les polluants anthropiques sont également déposés, du fait, cette fois, de la

proximité des sources primaires de SO_2 et de BC. On retrouve ce caractère mixte des dépôts à Beijing, pour les mêmes raisons, ainsi qu'à Hohhot avec une pollution anthropique moindre, se situant entre celle de Dalanzadgab et celles des villes proches des côtes. A Gwangju, la somme des dépôts cumulée est de l'ordre du dépôt d'aérosol minéral, soit environ 0.13 $g.m^{-2}$, soit encore 1/10 du dépôt d'aérosol minéral calculé à Liangning. Enfin, pour les villes japonaises, les dépôts de poussières désertiques sont de quelques dizaines de milligrammes par unité de surface et représentent environ 80 % de la masse déposée sur Toyama en 5 jours et 60 % à Osaka.

4.7 Conclusion

Pour conclure ce quatrième et dernier chapitre, résumons notre mise en perspective des principaux polluants anthropiques, impliqués dans la climatologie Est-asiatique avec les poussières minérales.

L'usage des bases de données d'émission GEIA (BC) et EDGAR (SO_2), associé à nos paramétrisations des transports et des transformations des espèces, nous permet d'obtenir des valeurs de concentrations 3D qui sont en accord avec les données bibliographiques. Nous avons ainsi pu discuter les lieux où se distribuent les maxima des pollutions anthropiques et naturelles et identifié les interfaces où ces polluants d'origines différentes se mélangent, à savoir la zone frontale et les couches inférieures des panaches de poussières minérales. Nous avons également établi des comparaisons entre les concentrations de polluants anthropiques en 3 villes et constaté que les distances aux sources primaires influaient de façon contrastée suivant le type de polluant, selon qu'il s'agit des composés soufrés (transformés et, en partie, capturés par les poussières) ou des BC (chimiquement inertes).

Nos calculs d'épaisseurs optiques atmosphériques (importantes, comme premières approches d'analyses radiatives plus élaborées) sont en accord avec les valeurs moyennes de la littérature et suivent plutôt bien, en 4 villes sur 6, les données horaires fournies par les réseaux d'observation. Les biais de simulation apparus en deux villes sont de nature soit simplement temporelle (retard de phase par rapport aux observations à Liangning, mais ordres de grandeur corrects), soit à la fois temporelle et quantitative (Toyama, où les simulations diffèrent totalement des mesures). Ceci illustre les difficultés inhérentes aux exercices de modélisations à petites échelles temporelles et spatiales.

Les dépôts, en surface, des polluants de toutes natures, font partie des processus météorologiques qui ont des conséquences sensibles dans les domaines écologiques et de santé publique. C'est pourquoi, bien que nous manquions de données de validation (pas d’analyses chimiques des précipitations), nous avons estimé des ordres de grandeur de ces dépôts sur 7 villes réparties en Mongolie, Chine, Corée et Japon. Ces estimations quantifient comment, d'Ouest en Est, les dépôts de polluants acides et carbonés voient leur contribution relative augmenter, par rapport à celle des poussières minérales, tout en prouvant que celles-ci restent toujours omniprésentes dans le cycle général des aérosols.

Chapitre 5
Conclusion générale et perspectives

5.1 Conclusions du présent travail

Les objectifs de notre travail étaient multiples et imbriqués: nous souhaitions développer certains aspects de la modélisation du cycle d'aérosols naturels et anthropiques consacré à une région apparaissant de plus en plus impliquée dans les problématiques météorologiques de pollution, l'Asie Orientale. L'intérêt de ce type d'approche est de disposer d'un outil qui permette, à terme, d'étudier les conséquences chimiques et radiatives de ces polluants de diverses natures. Nous avons présenté tout d'abord une étude bibliographique des propriétés spécifiques des aérosols et des gaz polluants dans cette région, ainsi que leurs impacts possibles (chapitre 1). Nous avons également présenté, lors de cette introduction générale, les principaux travaux de modélisation globales et méso-échelles réalisées sur ce thème.

Le premier stade de notre étude consistait à construire un cadastre d'émission de l'aérosol minéral, car ce polluant naturel est un composant incontournable de l'aérosol asiatique, et sa participation aux modifications climatiques locales doit être approfondie (même si les implications climatiques n'entrent pas dans le programme du présent travail). Nous avons calqué la conception de notre source de poussières sur le modèle de soulèvement (DPM) Marticorena et Bergametti [1995, 1997] déjà employé avec succès pour modéliser les flux de poussières sur le continent africain. Nous avons présenté, dans le chapitre 2, les principes de construction et les éléments d'un cadastre spatio-temporel spécifique des types de sol en Chine et en Mongolie. Nous avons choisi, pour mettre au point notre cadastre, une méthode indirecte, en ceci que le DPM est couplé en ligne avec le modèle mésoéchelle RAMS, dont nous avons, aussi, présenté les caractéristiques. Ce couplage permet de simuler des épisodes de poussières désertiques, incluant le soulèvement, le transport et le dépôt (sec et humide). A travers une série de tests contraints par des données d'événements de poussières de l'année 1998, renforcées par l'analyse des visibilités aux stations météorologiques de surface, nous avons ajusté les paramètres du cadastre, en nous focalisant plus particulièrement sur le facteur dit d'érodabilité. Les « runs » du modèle se sont poursuivis jusqu'à obtention d'une adéquation acceptable entre modèle et observations. A l'issue de ce chapitre, nous disposons donc d'un cadastre d'émission de poussières lequel, couplé au modèle mésoéchelle, permet des études du cycle des aérosols désertiques issus du continent asiatique oriental.

Le troisième volet de ce travail présente la validation du cadastre lors d'un épisode de tempête de poussières survenu au printemps 2002 en Chine. Les résultats de cette étude ont montré la pertinence de notre méthode, aussi bien au niveau des flux de poussières émises que pour les concentrations transportées (d'un point de vue spatial et temporel) et les répartitions en tailles des poussières (distribution granulométrique) observées in situ. Cette modélisation a fait l'objet d'une publication [Lasserre et al., 2005]. Nous avons poursuivi l'usage, et l'amélioration de notre cadastre en étudiant un événement observé au printemps 2005 à plus grande échelle que celui de 2002 puisqu'il concerne aussi la Corée et le Japon. Cet événement se subdivise en deux épisodes de 3 jours chacun, séparés par une journée plus claire (le 29 Avril). Dans cette étude de 2005, nous nous distinguons d'autres travaux de modélisation de la littérature, dans le sens où nous proposons une étude « en temps réel », et non pas en moyenne sur une période d'au moins plusieurs semaines, comme le propose la plupart des autres travaux (nos « runs » concernent une dizaine de jours). A partir de notre cadastre actualisé en fonction de l'enneigement de la fin Avril 2005, nous avons calculé les concentrations de surface et les charges colonne en poussières désertiques. Les cartes de contours de poussières sont corroborées par les observations satellitaires MODIS. Les indices d'aérosol TOMS confirment également nos contours de concentrations pour le 1er épisode de poussière mais suggèrent un retard d'une journée pour les calculs qui simulent le second épisode. Les limites du modèle sont perceptibles quand on cherche un synchronisation parfaite entre nos résultats et les concentrations mesurées (fournies par le Pr. Shimizu, avec qui nous avons collaboré pour ce travail), mais les tendances à quelques heures près sont bien reproduites dans l'ensemble : en effet, on simule correctement les deux événements de poussières observés à Hohhot et Beijing. Les amplitudes des concentrations volumiques en surface sont en très bon accord avec celles qui sont observées en Chine et nous avons mis en évidence le lien qui existait entre le panache observé à Hohhot et celui observé à Beijing. Les études de profils verticaux montrent que les transports ont lieu dans les 3 à 4 premiers kilomètres au dessus du sol. Ces profils présentent, sur des laps de temps de quelques heures, des variations de structure très nettes, alternant entre des formes de fronts homogènes et des formes de profils stratifiés. Ces structures simulées sont confirmées par les observations des données de LIDAR (intensité de rétrodiffusion et taux de dépolarisation). Les résultats relatifs à la ville de Toyama (Japon) pourraient représenter, d'une certaine manière, la « limite de l'exercice », puisque les données d'observation font état d'une très faible concentration, et le modèle également. Dans ce type de situation, l'on ne peut s'attendre à obtenir un accord correct entre modèle et mesures. Cependant, cela nous suggère qu'il y a lieu d'améliorer le

cadastre en quelques cellules sur les déserts du Nord-Est de la Chine, cellules qui n'étaient pas concernées lors des simulations de 1998 et 2002. Enfin, pour terminer cette analyse des transports d'aérosol minéral, nous avons quantifié l'évolution de la granulométrie entre les 3 villes étudiées, montrant par là comment le mode grossier est appauvri avec la distance aux sources désertiques.

La quatrième partie de notre travail, qui concerne certains des principaux polluants anthropiques, était la suite logique de notre thématique du cycle des aérosols est-asiatiques. Nous avons choisi des aérosols (BC et les sulfates SO_4^{2-}), ainsi qu'un gaz de pollution anthropique (SO_2, précurseur des sulfates) en sus des aérosols minéraux afin de modéliser l'imbrication de ces espèces dans les transports atmosphériques de polluants et les conséquences qui en découlent (ici, principalement les signatures optiques des aérosols). Par notre bibliographie, nous avons détaillé les types de pollutions induits par les composés soufrés et carbonés, tout spécialement en Asie orientale, et expliqué pourquoi des polluants associés aux minéraux étaient à eux quatre représentatifs d'une part sensible de la pollution Est-asiatique. Ici, nous avons été amenés à utiliser des cadastres de polluants anthropiques parmi ceux disponibles. Certains cadastres d'émissions de BC et de SO_2, parmi les plus employés par les modélisateurs, ont été comparés entre eux et nous avons conclu, au vu de nos expériences numériques, de la bibliographie et des mesures de terrain, que les sources les mieux à mêmes de décrire les pollutions urbaines, rurales et maritimes, étaient les bases GEIA (BC) et EDGAR (SO_2). Les paramétrisations dynamiques (vitesses de dépôts) et chimiques des polluants anthropiques ont été posées de façons simplifiées par rapport aux études spécialisées que nous rappelons. Nos paramétrisations sont certes simples (comme la conversion supposée systématique, et indépendante de l'humidité relative, de SO_2 en ions sulfates), mais elles se sont révélées efficaces pour modéliser les cycles atmosphériques. En effet, nous pouvons décrire la pollution observée sur le réseau quasi-continu des métropoles chinoises et coréennes ainsi que sur les mers qui les séparent du Japon. Des concentrations maximales de plusieurs dizaines de $\mu g.m^{-3}$ en BC et en SO_4^{2-}, ainsi que de plusieurs centaines de $\mu g.m^{-3}$ de SO_2, sont calculées en surface de mégalopoles comme Shanghai, Beijing et Séoul, en accord avec les mesures relevées dans la littérature. Nous montrons de plus que les panaches d'aérosols naturels et anthropiques se mélangent dans un premier temps à l'avant du front des poussières désertiques. Les mélanges s'opèrent ensuite préférentiellement quand les particules minérales sont déjà situées au-dessus des sources de pollution anthropique. Nous avons ainsi établi des coupes verticales qui montrent que le SO_2 capturé par les particules désertiques se situe à l'avant et dans la partie inférieure du panache minéral et que ces

particules mixtes sont transportées jusqu'au Japon, participant alors probablement, lors de dépôts, à une pollution d'origine continentale.

A l'échelle locale, limitée ici aux villes de Hohhot, Beijing et Toyama, nous avons mis en évidence les corrélations pouvant exister entre les 3 espèces de polluants anthropiques que nous avons considérés. Ainsi, sur la capitale chinoise, une dynamique locale complexe associée à une oxydation $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ également locale explique que l'on obtienne une corrélation peu marquée entre les concentrations des composés soufrés alors que les polluants primaires BC et SO_2, proches de leurs sources, sont fortement corrélés. A grandes distances des sources intenses de SO_2 et de BC, à Toyama (ville beaucoup moins polluée que Beijing), le SO_4^{2-} l'emporte sur le SO_2 et se trouve corrélé au BC inerte.

A l'aide de mesures optiques réalisées à la verticale d'une demi-douzaine de sites localisés sur les chemins de transport des aérosols, nous avons mis nos estimations de charges colonnes et d'épaisseurs optiques à l'épreuve des faits. Nous avons montré que nos modélisations des colonnes intégrées en polluants anthropiques restituaient correctement les zones d'indices TOMS élevés à partir du 30 Avril. Nous avons examiné des hypothèses proposant une éventuelle participation des BC à ces indices TOMS, que les charges colonnes en minérales ne pouvaient à elle seules justifier.

Plus quantitativement, nous avons attribué, à partir des données de la bibliographie, des valeurs aux surfaces spécifiques d'extinction aux BC, aux sulfates (issus aussi bien de l'oxydation du SO_2 « libre » que de celle du SO_2 capturé par l'aérosol minéral) et aux particules minérales: 12 $m^2.g^{-1}$, 8 $m^2.g^{-1}$ et 1 $m^2.g^{-1}$ respectivement. Les AOT que nous calculons comme la somme des contributions des 4 types d'aérosols pris en compte sont alors comparées aux données du réseau AERONET en 6 villes. Nous confrontons également nos calculs avec les exposants d'Angström révélateurs de la nature des aérosols observés sur site. Les ordres de grandeur des AOT calculées sont toujours cohérents avec les ordres de grandeurs des moyennes d'observation. Nous obtenons, sur la plupart des villes, des amplitudes d'AOT convenables ainsi que des évolutions (à quelques heures) conformes aux historiques des observations du 27 Avril au 02 Mai. Nous montrons aussi que les abondances relatives des aérosols modélisées sont fréquemment, pour l'ensemble des villes sauf Toyama, compatibles avec les intervalles des exposants d'Angström observés. Une telle correspondance des AOT et des exposants d'Angström était loin d'être acquise et nous n'avons pas trouvé dans la littérature de tests de ce genre réalisés sur des pas de temps simulés de 3 heures.

En résumé, ce travail constitue une validation, certes encore modeste mais satisfaisante, de l'outil de modélisation que nous avons mis en place: caractérisation des sources, adaptation du DPM, calculs des transports, quantification des conversions et captures de SO_2, choix des paramètres optiques.

5.2 Perspectives

Les axes de travail qui prolongeront notre étude sont, nous l'espérons, nombreux. Sans qu'il y ait de hiérarchie de valeur ou de priorités dans le temps, nous citerons les points suivants :

1. Travailler le cadastre minéral sur les cellules qui nécessitent d'être affinées afin de mieux restituer certains flux d'émission très localisés. Ce travail peut être développé en parallèle à l'adaptation au code RAMS du modèle de soulèvement de l'aérosol minéral Est-asiatique proposé par B. Laurent [2005] et pour laquelle nous expliquons nos premiers résultats en annexe de ce manuscrit.
2. Améliorer la paramétrisation du dépôt des aérosols naturels et anthropiques. Pour ce qui concerne les poussières désertiques, il nous faudra trouver des données granulométriques de plusieurs évènements pour vérifier si les dépôts spectraux que nous calculons sont conformes à ces observations. S'il s'avère que nous nous éloignons fortement des observations, il nous faudra voir dans quelles proportions il peut être nécessaire de reconsidérer certains éléments du cadastre, du calcul des transports et des flux de dépôt. Pour les dépôts des polluants anthropiques, il serait intéressant de préciser comment les composés soufrés peuvent être inclus dans les pluies acides.
3. Travailler les effets radiatifs des aérosols. Voir, en particulier, comment la présence de telle ou telle espèce chimique participe aux effets de *heat low*. Ces effets verticaux apparaissent lorsqu'une couche d'air riche en aérosol et proche de la surface ou à une altitude moyenne de la troposphère, subit une augmentation de température consécutive à l'absorption du rayonnement solaire par certains aérosols qu'elle contient. Cette augmentation de quelques degrés de température (*heat*) provoque l'ascendance de la masse d'air chauffée, à la suite de quoi une zone de basse pression (*low … pressure*) se crée en surface, à la verticale de cette convexion sèche. Une dépression ainsi localisée a

des conséquences sur les vents de surface puisqu'elle drainera vers elle les masses d'air environnantes.

4. Déterminer la résolution horizontale optimale à appliquer aux projections de cadastres d'émissions pour les simulations à l'échelle de l'Asie orientale. Nous avons employé un maillage de 25×25 km^2, résolution inférieure, du simple au triple, à celles de la plupart des autres simulations publiées. Cette résolution donne des résultats satisfaisants si le relief réel n'est pas trop lissé par une projection à cette échelle. Nous sommes conscients que si nous souhaitons modéliser des épisodes de poussières très localisés, il peut s'avérer nécessaire de disposer, à la source, d'un cadastre résolu à une échelle inférieure au degré (certainement au ¼ de degré [Laurent et al., 2005]). Nous devrons réfléchir à la façon dont la mise au point de la source de poussières pourrait prendre en compte des anisotropies (axe de crêtes de montagnes, orientation collective de dunes, émissivité différente selon la direction du vent de surface …) dont les effets sont parfois très sensibles. Un cadastre vectorisé (effets de l'anisotropie en surface) serait-il l'idéal ? En tout cas, nous travaillons sur ces effets en Afrique (thèse de Ch. Bouet, 2007) et les particularités des reliefs du Nord de la Chine nécessiteront que l'on se penche sur leur cas.
5. Simuler les cycles saisonniers des aérosols en fixant les durées de simulation sur un exercice annuel. Cela permettrait une description plus climatologique des concentrations et, par voie de conséquence, des effets, des polluants naturels et anthropiques. Ce type de simulation étant extrêmement coûteux en temps de calcul, il est fort possible que nous devions sacrifier de la résolution temporelle et spatiale pour que les calculs aboutissent dans une durée raisonnable.
6. Les processus chimiques plus complexes de transports et de vieillissements de gaz et d'aérosols sont modélisés dans des modules spécifiques comme ISORROPIA. L'usage de ce type d'outil est un objectif à long terme qui permettrait d'avoir une analyse plus globale et plus fine des impacts des aérosols en Asie Orientale.

Annexe

Nous proposons une annexe à ce manuscrit de thèse. Il nous apparaît en effet utile de placer notre cadastre d'émission éolien en perspective avec le travail de thèse de B. Laurent [2005] puisque ces deux travaux partagent certaines finalités.

Nous avons procédé en deux temps pour mettre au point notre carte des sols émissifs. D'abord, nous avons utilisé des ressources bibliographiques, afférentes aux zones désertiques et arides de Chine et de Mongolie, pour affecter à tel ou tel type de sol employé dans le DPM MB95, et se trouvant en tel ou tel lieu, des érodabilités déduites qualitativement des données de rugosité de surface (POLDER). Ensuite, nous avons effectué des séries de "runs", aboutissant à un cadastre validé par des données de terrain. De son côté, B. Laurent a proposé un cadastre d'émission éolienne sur la même région du Nord Est Asiatique mais sa mise au point s'est appuyée, d'une part sur une interprétation systématisée des observations satellitaires, d'autre part sur une documentation des particularités des sols désertiques fournies par une étude in situ, réalisée par un scientifique chinois. Ce cadastre sera désigné ci-après par « cadastre BL ». La validation du cadastre BL a été réalisée en comparant les fréquences de soulèvements, obtenues par le modèle, avec les fréquences saisonnières et annuelles des tempêtes de poussières minérales observées en Chine. Ce travail prend également en compte l'influence de l'humidité du sol en surface sur les soulèvements. Cette méthode est donc, en ce qui concerne la mise au point intrinsèque du cadastre, incontestablement bâtie sur une méthode moins empirique que la notre. Pour ce qui est de la validation de la carte obtenue, B. Laurent se base sur les flux émis à la source alors que, pour effectuer nos validations, nous avons utilisé des données de transports (images satellites) et des mesures de concentrations sur des lieux d'arrivées de ces transports de poussière.

Le cadastre BL particularise non pas les types de sols en leur attribuant, indépendamment du lieu, un coefficient α = F/G spécifique de leur minéralogie (méthode que nous avons suivie), mais un coefficient α « localisé », c'est-à-dire typique de la zone géographique émettrice de poussières minérales. Ainsi, chaque désert se voit attribuer son propre coefficient α. Notons qu'il s'agit d'une innovation par rapport aux cadastres précédents (établis notamment en Afrique) : cette régionalisation des coefficients α tient au fait que les zones arides de l'Asie orientale sont isolées les unes des autres, beaucoup plus, par exemple, que les déserts africains.

Comme les deux approches sont différentes, elles aboutissent inévitablement à des cadastres qui présentent quelques différences. Afin d'estimer une conséquence de ces différences, nous proposons d'étudier les cartes des vitesses seuils à 10m. Ces cartes indiquent les vitesses U à partir desquelles l'érosion éolienne devient efficace et provoque des flux verticaux de poussières minérales.

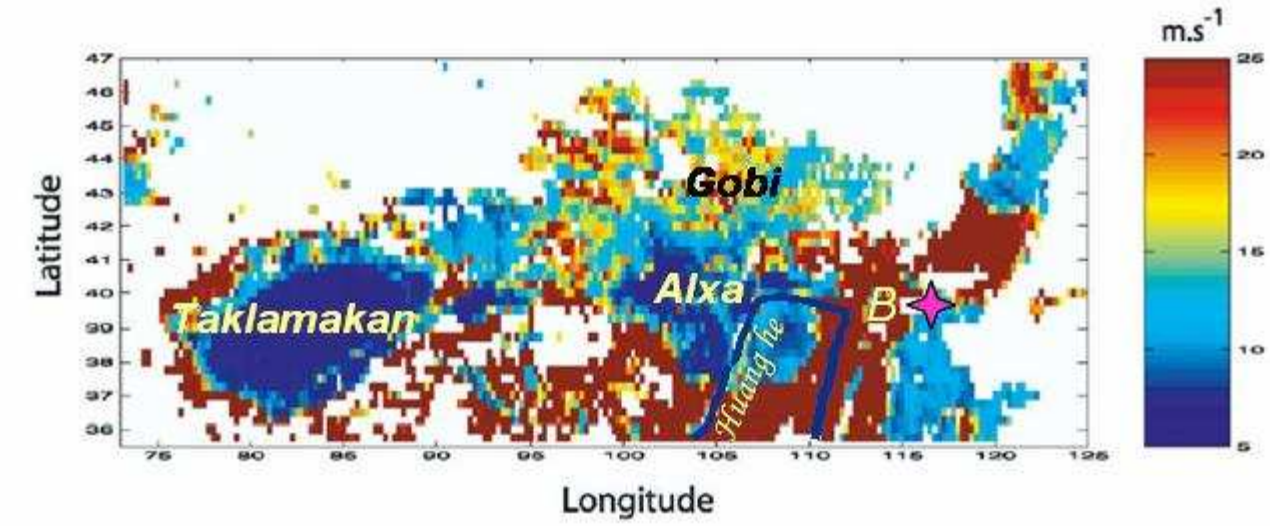


Figure A.1.a – Carte des vitesses seuil à 10 m, d'après Laurent [2005]

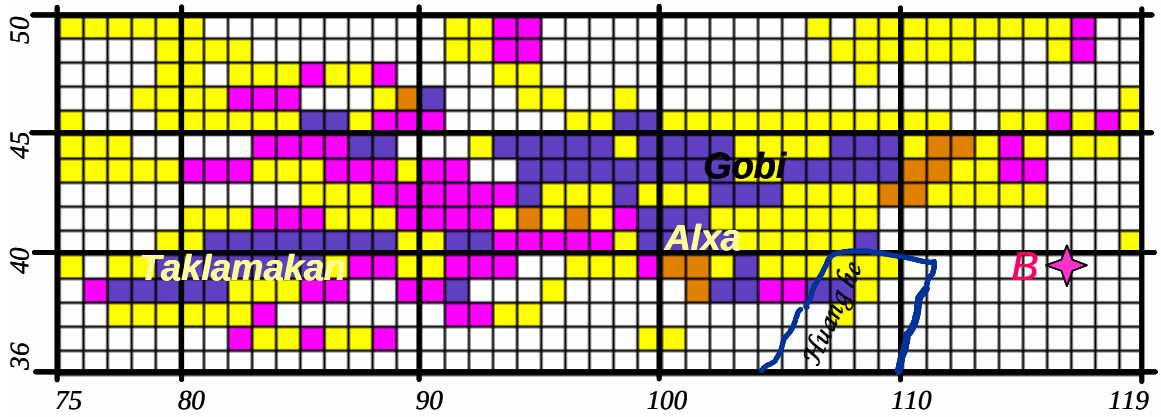


Figure A.1.b – Carte des vitesses seuil à 10 m calculée à partir du cadastre de ce présent travail. Jaune: $U \in [6,7[$; Orange: $U \in [7,8[$; Rose: $U \in [11,12[$; Bleu: $U \in [16,18[$; Blanc: sol non mobilisable;

La *figure A.1.a* présente la carte des vitesses seuils à 10 m obtenue par le cadastre BL, à une résolution spatiale au ¼ de degré, et comprises entre 5 et 25 $m.s^{-1}$ (au-delà, le sol est supposé non érodable). Nous avons superposé quelques indications géographiques afin de faciliter la comparaison avec la carte des vitesses seuils à 10 m déduites de notre propre cadastre (*figure A.1.b*).

Les zones les plus émettrices sont mises en évidence sur le cadastre BL par les régions en nuances de bleus, où les vitesses seuils sont inférieures à une cinquantaine de km/h (12~13 $m.s^{-1}$): les déserts de Gobi situés dans le plateau de l'Alxa et désert du Taklamakan. Sur notre cadastre, ces régions apparaissent également mais elles sont caractérisées par des écarts importants de vitesses seuils: de 6 $m.s^{-1}$ (jaune) à 18 $m.s^{-1}$ (bleu) dans les mêmes secteurs. Sur ces régions, notre modèle déclenche des soulèvements pour des vitesses qui dépassent des seuils d'environ 22 km/h à la périphérie du désert de Taklamakan et à l'Est de l'Alxa mais, les érodabilités y étant faibles, ces zones sont en réalités peu émettrices en masses. En revanche, bien que, sur notre cadastre, le cœur du Taklamakan et de nombreuses cellules disséminées dans les déserts de Gobi possèdent des vitesses seuils plus importantes (U ~ 60 km/h), ce qui pourrait laisser penser que ces régions émettent peu, les érodabilités en ces points sont plus élevées (en particulier dans le Taklamakan) donc provoquent des flux importants de poussières désertiques. Pour résumer, notre approche s'appuie sur une caractérisation des sols plus intuitive que celle de B. Laurent, ce qui nous a logiquement conduit à "tuner" les érodabilités pour compenser des descriptions de sols qui aboutiraient sans cela à décrire certaines zones comme peu, ou trop, émissives par rapport à la réalité. Cela dit, le résultat final que nous obtenons, dans l'ensemble, simule correctement, nous l'avons vu, les événements observés.

Nous avons, à ce jour, réalisés quelques "runs" relatifs à l'épisode d'Avril-Mai 2005 avec le cadastre BL. Les cartes de concentrations des poussières en surface obtenues pour le 1er événement (27-28 Avril) montrent des valeurs et des contours analogues à ce que nous obtenons, c'est-à-dire une panache entre Hohhot et Beijing avec des pics de quelques centaines de $\mu g.m^{-3}$. Cette source restitue un soulèvement important à partir du 28 au Nord-Est de la carte et celui-ci ne nous semble pas correspondre aux observations. Un soulèvement de poussière est calculé le 30 Avril, en fin de journée locale, à nouveau au Nord-Est de la frontière Chine-Mongolie: nous avons aussi représenté ce deuxième épisode de tempête, mais avec du retard par rapport aux observations TOMS. Nous avons noté que les concentrations issues du cadastre BL sont élevées en zone source (supérieures à $1.5.10^5$ $\mu g.m^{-3}$), mais cette phase de la simulation décrit très bien un transport de poussières au dessus du Japon le 30

Avril-01 Mai. Enfin, un important soulèvement de poussière est calculé au Sud de Beijing le 30 Avril et est transporté vers le Sud Ouest du pays les jours suivants: un tel soulèvement sur ce secteur géographique ne correspond pas aux observations. Nous pensons que, comme les vitesses seuils au Sud de Beijing sont assez basses (*fig A.1.a*), il se peut qu' exceptionnellement des vents sortent des moyennes statistiques locales et soient suffisamment puissants pour faire en sorte que le cadastre soit émetteur alors qu'il ne l'est pas dans la réalité. Cette simulation nous semble une illustration (fortuite) d'une situation limite de ce genre.

Avant de tenter une conclusion, même partielle, il faut reconnaître que notre validation des cadastres est en quelque sorte, indirecte, puisqu'elle s'appuie sur des observations de transports d'aérosols, et non pas sur des flux de masse à la source. Par suite, il est réaliste de supposer que le modèle mésoéchelle peut introduire un biais systématique dans le transport, biais qui est inhérent à ce type d'exercice. Par conséquent, il convient d'être prudent dans l'analyse des résultats.

En conclusion, nous pensons que le cadastre BL est très certainement un outil de travail incontournable pour des simulations de longues durées, traitées avec de larges pas de temps et dans lesquelles certaines situations météorologiques critiques seront statistiquement lissées et sans conséquences sensibles sur la globalité des résultats. Nous pensons aussi que notre cadastre est, pour sa part, bien adapté à la modélisation d'épisodes de quelques jours à quelques semaines, et que dans la suite les deux cadastres pourront s'appuyer chacun sur les points forts de l'autre pour proposer des améliorations mutuelles.

Références Bibliographiques

Abe, O., K. Kosugi, T. Sato, S. Mochizuki, J. Xu, M. Liu, S. Yamaguchi and W. Wei, 2005. Aeolian Dust Transportation on Fine Days over the Slopes in Mountainous Areas around the taklimakan desert, China, J. Meteor. Soc. Japan, 83A, 19-30.

Adams, J.W., D. Rodriguez and R.A. Cox, 2005. The uptake of SO2 on Saharan dust: a flow tube study, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 5, 2643–2676.

Aki, S., S.-I. Fujita and Y. Ichikawa, 1999-2005. An estimation for atmospheric sulfur emission and deposition over the japanese archipelago, http://www.worldenergy.org/wec-geis/publications/default/tech_papers/17th_congress/1_3_09.asp, World Energy Council.

Albrecht, B.A. 1989. Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, Science, 245, 1227-1230.

Alfaro, S.C and L. Gomes, 2001. Modeling mineral aerosol production by wind erosion: Emission intensities and aerosol distributions in source areas, J. Geophys. Res, 106, 18075-18084.

Alfaro, S.C., L. Gomes, J. L. Rajot, S. Lafon, A. Gaudichet, B. Chatenet, M. Maille, G. Cautenet, F. Lasserre, H. Cachier, and X. Y. Zhang, 2003. Chemical and optical characterization of aerosols measured in spring 2002 at the ACE-Asia supersite, Zhenbeitai, China, J. Geophys. Res., 108(D23),8641,doi:10.1029/2002JD003214.

Alkezweeny, A.J., and D.C. Powell, 1977. Estimation of transformation rete of SO2 to SO4 from atmospheric concentration data. Atmos. Environ., 11, 179-182.

Angstrom, A., 1964, The parameters of atmospheric turbidity, Tellus, 16, 64-75.

Anh, Y. C. and J. K. Lee, 2006. Physical, chemical, and electrical analysis of aerosol particles generated from industrial plants, J. Aerosol Sci., 37(2), 187-202.

Antuña, J.C., A. Robock, G.L. Stenchikov, L.W. Thomason and J.E. Barnes, 2002. Lidar validation of SAGE II aerosol measurements after the 1991 Mount Pinatubo eruption, J. Geophys. Res., 107, (D14), doi:10.1029/2001JD001441.

Aoki, I., Y. Kurosaki, R. Osada, T. Sato and F. Kimura, 2005. Dust storms generated by mesoscale cold fronts in the Tarim Basin, Northwest China, Geophys. Res. Lett., 32, L06807, doi:10.1029/2004GL021776.

Aoki, K. and Y. Fujiyoshi, 2003. Sky Radiometer Measurements of Aerosol Optical Properties over Sapporo, Japan, J. Meteor. Soc. Japan, 81(3), 493-513.

Arimoto, R., R. A. Duce, B. J. Ray, W. G. Ellis Jr., J. D. Cullen, and J. T. Merrill, 1995. Trace elements in the atmosphere over the North Atlantic, J. Geophys. Res., 100, 1199−1213.

Arimoto, R., X.Y. Zhang, B.J. Huebert, C.H. Kang, D.L. Savoie, J.M. Prospero, S.K. Sage, C.A. Schloesslin, H.M. Khaing and S.N. Oh, 2004. Chemical composition of atmospheris aerosols from Zhenbeitai, China, and Gosan, South Korea, during ACE-Asia, J. Geophys. Res., 109, D19S04, doi:10,1029/2003JD004323,2004.

Arya, S.P.S., 1975. A drag partition theory for determining the large-scale roughness parameter and wind stress on Artic parck ice, J Geophys. Res., 80, 3447-3454

ASL and Associates, 1997. Sulfur emissions by country and year. report No: DE96014790. US Department of Energy, Washington, DC.

Balkanski, Y., S. E. Bauer, R. van Dingenen, P. Bonasoni, M. Schulz, H. Fischer, G. P. Gobbi, M. Hanke, D. Hauglustaine, J. P. Putaud, A. Stohl, and F. Raes, 2003. The Mt Cimone, Italy, free tropospheric campaign: principal characteristics of the gaseous and aerosol composition from European pollution, Mediterranean influences and during African dust events, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 3, 1753–1776.

Bates, T.S., et al., 2004. Marine boundary layer dust and pollutant transport associated with the passage of a frontal system over eastern Asia, J. Geophys. Res., 109, D19S19, doi:10.1029/2003JD004094.

Bellouin, N., O. Boucher, D. Tanré and O. Dubovik, 2003. Aerosol absorption over the clear-sky oceans deduced from POLDER-1 and AERONET observations, Geophys. Res. Lett., 30(14), 1748, doi:10.1029/2003GL017121.

Bellouin, N., O. Boucher, J. Haywood and S. Reddy, 2005. Global estimate of aerosol direct radiative forcing from satellite measurements, Nature, 438(22), doi:10.1038/nature04348, 1138-1141.

Bergametti, G. , L. Gomes, E. Remoudaki, M. Desbois, D. Martin and P. Buat−Ménard, 1989. Present transport and deposition patterns of African dusts to the North−Western Mediterranean, in Paleoclimatology and Paleometeorology: Modern and past patterns of global atmospheric transport, M. Leinen and M. Sarnthein eds, NATO ASI Series n° 282, Kluwer Publ. Company, Dordrecht, pp 227−252.

Bey, I., D. J. Jacob, R. M. Yantosca, J. A. Logan, B. D. Field, A. M. Fiore, Q. Li, H. Y. Liu, L. J. Mickley and M. G. Schultz, 2001. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, J. Geophys. Res., 106(D19), 23073-23096, 10.1029/2001JD000807.

Bory, A., F. Dulac, C. Moulin, I. Chiapello, P. P. Newton, W. Guelle, C. E. Lambert, and G. Bergametti, 2002. Parametrization of the increase of the aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas, Annales Geophysicae, 20, 2067–2076

Bouet, C., F. Szczap, M. Leriche and A. Benassi, 2006. What is the effect of cloud inhomogeneities on actinic fluxes and chemical species concentrations ?, Geophys. Res. Lett., 33, L01818, doi:10.1029/2005GL024727.

Breon, F.-M., D. Tanre and S. Generoso, 2002. Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite, Science, 295(5556), 834-838.

Brooks, N., 2004. Environmental change and land-atmosphere interactions in northern Africa: the role of Saharan dust, In Leroy, S. and Costa, P. (Eds.) Environmental Catastrophes in Mauritania, the Desert and the Coast. Abstract Volume and Field Guide. Mauritania, 4-18 January 2004. First Joint Meeting of ICSU Dark Nature and IGCP 490

Carmichael, G.R., Y. Tang, G. Kurata, I. Uno, D. G. Streets, N. Thongboonchoo, J.-H. Woo, S. Guttikunda, A. White, T. Wang, D. R. Blake, E. Atlas, A. Fried, B. Potter, M. A. Avery, G. W. Sachse, S. T. Sandholm, Y. Kondo, R. W. Talbot, A. Bandy, D. Thornton and A. D. Clarke, 2003. Evaluating regional emission estimates using the TRACE-P observations, J. Geophys. Res., 108, D21, 8810, doi:10.1029/2002JD003116.

Carmichael, G.R., G. Calori, H. Hayami, I. Uno, S.Y. Cho, M. Engardt, S.-B. Kim, Y. Ichikawa, Y. Ikeda, J.-H. Woo, H. Ueda and M. Amann, 2002. The MICS-Asia study: model intercomparison of long-range transport and sulfur deposition in East Asia, Atmos. Env., 36(2), 175-199.

Carmichael, G.R., H. Hayami, G. Calori, I. Uno, S.Y. Cho, M. Engardt, S.-B. Kim, Y. Ichikawa, Y. Ikeda, H. Ueda and M. Amann, 2001. Model Intercomparison Study of Long Range Transport and Sulfur deposition in East Asia (MICS-ASIA), Water, Air & Soil Pollution, 130 (1-4), 51-62, doi: 10,1023/A:1012291200633.

Carmichael, G.R., D.G. Streets, G. Calori, M. Amman, M.Z. Jacobson, J. Hansen, H. Ueda, 2002b. Changing trends in sulfur emissions in Asia: implications for acid deposition, air pollution, and climate. Environmental Science and Technology, 36, 4707-4713.

Carrico, C.M., P. Kus, M.J. Rood, P.K. Quinn and T.S. Bates, 2003. Mixtures of pollution, dust, sea salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: radiative properties as a function of relative humidity, J. Geophys. Res., 108(D23), 8650, doi:10.1029/2003JD003405.

Cautenet, G., F. Guillard, B. Marticorena, G. Bergametti, F. Dulac and J. Edy, 2000. Modelling of a Saharan dust event, Meteor. Zeit.,9(4), 221-230 .

Cautenet, S. and B. Lefeivre, 1994. Contrasting behavior of gas and aerosol scavenging in convective rain: A numerical and experimental study in the African equatorial forest, J. Geophys. Res., 99(D6) , 13013-13024.

Chang, Y. S., R Arndt and G. R. Carmichael, 1996. Mineral base-cation deposition in Asia, Atmos. Environ., 30, 2417-2427.

Charlson, R.J., S.E. Schwartz, J.M. Hales, R.D. Cess, J.A. Coackley Jr., J.E. Hansen and D.J. Hofmann, 1992. Climate forcing by anthropogenic aerosols, Science, 255, 423-430.

Cheng, R. J., D. C. Blanchard and R. J. Cipriano, 1988. The formation of hollow sea-salt particles from the evaporation of drops of seawater, Atmos. Res., 22(1), 15-25.

Chepil, W.S., 1951. Properties of soil which influence wind erosion: IV. State of dry aggregate structure, Soil Sci., 72, 387-401

Chiapello, I., G. Bergametti, L. Gomes, B. Chatenet, F. Dulac, J. Pimenta and E. Santos-Soares, An additional low layer transport of Sahelian and Saharan dust over the North-Eastern Tropical Atlantic, Geophys. Res. Lett., 22, 3191-3194, 1995.

Chiapello, I., G. Bergametti, B. Chatenet,P. Bousquet,F. Dulac,I. Jankowiac,C. Liousse and E. Santos Soares, 1999. Contribution of the different aerosol species to the aerosol mass load and optical depth over the northeastern tropical Atlantic, *J. Geophys. Res.*, *104*, 4025-4035.

Chiapello, I., 1996. les aérosols atmosphérique au-dessus de l'Atlantique Nord Tropical: approche physico-chimique et météorologique. Evaluation de la contribution des différentes espèces à l'épaisseur optique en aérosol, Thèse de doctorat, Université Paris VII, 250 pp.

Chin, M., P. Ginoux, S. Kinne, O. Torres, B.N. Holben, B.N. Duncan, R.V. Martin, J.A. Logan, A. Higurashi and T. Nakajima, 2002. Tropospheric Aerosol Optical Thickness from the GOCART Model and Comparisons with Satellite and Sun Photometer Measurements, J. of the Atmospheric Sc., 59(3), 461-483.

Chin, M., D.J Jacob, G.M. Gardner, P.A. Spiro, M. Foreman-Fowler and D.L. Savoie, 1996. A global three-dimensional model of tropospheric sulfate, J. Geophys. Res., 101(D13), 18667-18690.

Chin, M., A. Chu, R. Levy, L. Remer, Y. Kaufman, B. Holben, T. Eck, P. Ginoux and Q. Gao, 2004. Aerosol ditribution in the Northern Hemisphere during ACE-Asia: Results from global model, satllite observations, and Sun photometer measurements, J. Geophys. Res., 109, D23S90, doi:10.1029/2004JD004829.

Chomette, O., 1999. Modelisation et Analyse Meso-Echelle du cycle de l'Aerosol Desertique. Aspects Radiatifs et Dynamiques, Thèse de doctorat (Lasers, Molécules, Rayonnement Atmosphérique), Université des Sciences et Technologies de Lille (U.F.R. de Physique Fondamentale, Laboratoire d'Optique Atmosphérique).

Chuang, P.Y., R.M. Duvall, M.S. Bae, A. Jefferson, J.J. Schauer, H. Yang, J.Z. Zu and J. Kim, 2003. Observations of elemental Carbon and absorption during ACE-Asia and implications for aerosol radiative properties and climate forcing, J. Geophys. Res., 108(D23), 8634, doi:10.1029/2002JD003254.

Chylek, P., G. Videen, D. Nat, R.C. Pinnick and J.D Klett, 1995. Effect of black carbon on the optical properties and climate forcing of sulfate aerosols, J. Geophys. Res., 108(16), 325-332.

Claquin, T., M. Schulz and Y. Balkanski, 1999. Modeling the mineralogy of atmospheric dust sources, J. Geophys. Res., 104(D18), 22243–22256.

Clark., A., V. Kapustin, S. Howell, K. Moore, B. Lienert, S. Masonis, T. Anderson and D. Covert, 2003. Sea-Salt Size Distributions from Breaking Waves: Implications for Marine Aerosol Production and Optical Extinction Measurements during SEAS&ast, Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 20(10), 1362-1374.

Clarke, A.D., J. N. Porter, F. P. J. Valero and P. Pilewskie, 1996. Vertical profiles, aerosol microphysics, and optical closure during the Atlantic Stratocumulus Transition Experiment: Measured and modeled column optical properties, J. Geophys. Res., 101(D2), 4443–4454.

Clarke, A.D., Y. Shinozuka,V.N. Kapustin, S. Howell, B. Huebert, S. Doherty, T. Anderson, D. Covert, J. Anderson, X. Hua, K.G. Moore II, C. McNaughton, G. Carmichael and R. Weber, 2004. Size distributions and mixtures of dust and black carbon aerosol in Asian outflow: Physiochemistry and optical properties, J. Geophys. Res., 109, D15S09, doi:10.1029/2003JD004378.

Cohen, D.D., D. Garton, E. Stelcer, O. Hawas, T. Wang, S. Poon, J. Kim, B.C. Choi, S.N. Oh, H.-J. Shin, M.Y. Ko and M. Uematsu, 2004. Multielemental analysis and characterization of fine aerosols at several key ACE-Asia sites, J. geophys. Res., 109, D19S12, doi:10,1029/2003JD003569.

Collins, W.D., P.J. Rasch, B.E. Eaton, D.W. Fillmore, J.T. Kiehl, C.T. Beck and C.S. Zender, 2002. Simulation of aerosol distributions and radiative forcing for INDOEX: Regional climate impacts, J. Geophys. Res., 107(D19), 8028, doi:10.1029/2000JD000032.

Cooke, W.F., C. Liousse, H. Cachier and J. Feichter, 1999. Construction of a 1°x1° fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model, J. Geophys. Res., 104(D22), 137-162.

Corbett, J. J. and P. Fischbeck, 1997. Emissions from Ships, Science, Vol. 278. no. 5339, 823-824.

Cotton, W. R., R. A. Pielke, R. L. Walko, G. E. Liston, C. J. Tremback, H. Jiang, R. L. McAnelly, J. Y., Harrington, M. E. Nicholls, G. G. Carrio, and J. P. McFadden, 2003. Rams 2001 : Current status and future directions. Meteorol. Atmos. Phys., 82, 5-29.

Cox, R. A., 1975. Particle formation from homogeneous reactions of sulfur dioxide and nitrogen dioxide. Tellus, 26, 235-240.

Cyranoski, D., 2005. Satellite view alerts China to soaring pollution, Nature, 437, doi: 10.1038/437012b, 12-12.

D'Almeida, G.A, P. Keopke and E.P. Shettle, 1991. Atmospheric Aerosols: Global Climatology and Radiative Characteristics, AD Publishing, 559 pp.

Desboeuf, K and G. Cautenet, 2005. Transport and mixing zone of desert dust and sulphate over Tropical Africa and the Atlantic Ocean region, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 5, 5615–5644.

Draxler, R.D., D.A. Gillette, J.S. Kirkpatrick and J. Heller, 2001. Estimating PM10 Air Concentrations from Dust Storms in Iraq, Kuwait, and Saudi Arabia, Atmos. Env., 35(25), 4315-4330.

Dubovik, O., B.N. Holben, T.F. Eck, A. Smirnov, Y.J. Kaufman, M.D. King, D. Tanré and I. Slutsker, 2002. Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations, J. Atmos. Sc., 59(3), 590-608.

Duda, D. P., G. L. Stephens, B. Stevens, and W. R. Cotton, 1996. Effects of aerosol and horizontal inhomogeneity on the broadband albedo of marine stratus : numerical simulations. J. Atmos. Sci., 53, 3757-3769.

Eastman, J. L., R. A. Pielke and W. A. Lyons, 1995. Comparison of lake-breeze model simulations with tracer data. J. Appl. Meteor., 34, 1398-1418.

Eastman, J.L. 1995. Numerical simulation of hurricane andrew- rapid intensification. In 21st conf. on Hurricanes and tropical Meteorology.

Eck, T.F., B.N. Holben, O. Dubovik, A. Smirnov, P. Goloub, H.B. Chen, B. Chatenet, L. Gomes, X.-Y. Zhang, S.-C. Tsay, Q. Ji, D. Giles and I. Slutsker, Columnar aerosol optical properties at AERONET sites in central eastern Asia and aerosol transport to the tropical mid-Pacific, J. Geophys. Res., 110, D06202, doi:10.1029/2004JD005274.

Eliassen, A., and J. Saltbones, 1975. Decay and transformation rates of SO2, as estimated from emission data, trajectory and measured air concentrations. Atmos. Env., 9, 425-429.

Fécan, F., Marticorena B. and Bergametti G., 1999. Parametrization of the increase of the aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil mosture for semi arid areas, Ann. Geophys., 17, 149-157.

Fialho, P., A.D.A. Hansen and R.E. Honrath, 2005. Absorption coefficients by aerosols in remote areas: a new approach to decouple dust and black carbon absorption coefficients using seven-wavelength Aethalometer data

Fouquart, Y. and B. Bonnel, 1980. Computations of solar heating of the earth's atmosphere: a new parametrization. Beitr. Phys. Atmos., 53, 35-62.

Fujitani, Y., N. Murao, S. Ohta, S. Yamagata and T. Endoh, 2004. Atmospheric Aerosols over the Western Pacific Ocean during the R/V Mirai Cruises in 2002, J. Meteor. Soc. Japan, 82(5), 1417-1434.

Gao, T., Su L., Ma Q., Li H., Li X. and Yu X., 2003. Climate analyses on increasing dust storm frequency in the springs of 2000 and 2001 in Inner Mongolia. Int. J. Climatology, 23(14),1743-1755.

Gayet J.– F., J. Ovarlez, V. Shcherbakov, J. Ström, U. Schumann, A. Minikin, F. Auriol, A. Petzold and M. Monier M, 2004. Cirrus cloud microphysical and optical properties at southern and northern midlatitudes during the INCA experiment, J. Geophys. Res., 109, D20206, doi:10.1029/2004JD004803.

Gerasopoulos E., M.O. Andreae, C.S. Zerefos, T.W. Andreae, D. Balis, P. Formenti, P. Merlet, V. Amiridis and C. Papastefanou, 2003. Climatological aspects of aerosol optical properties in Northern Greece, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 3, 2059–2099.

Gillette, D.A., 1979. Environmental factors affecting dust emission by wind erosion, in Sharan Dust, Morales C., Wiley and Sons (Eds.), New-York (USA), 71-94.

Gillette, D.A., Adams J., Endo A., Smith D. and Khil R., 1980. Threshold velocities for of soil particles into the air by desert soils, J. Geophys. Res., 85, 5621-5630.

Gillette, D.A., Adams J., Muhs D.R. and Khil, R., 1982. Threshold friction velocities and rupture moduli for crusted desert soils for the input of soil particles into the air, J. Geophys. Res., 87, 9003-9015.

Ginoux, P., M. Chin, I. Tegen, J. M. Prospero, B. Holben, O. Dubovik and S.-J. Lin, 2001. Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, J. Geophys. Res., 106(D17), 20255– 20273.

Gitay, H., A Suárez, RT.Watson, DJ Dokken (Eds), 2002. Climate Change and Biodiversity. IPCC, Geneva, Switzerland. pp 85.

Grini, A., G. Myhre, J. K. Sundet and Ivar S.A. Isaksen, 2002. Modeling the Annual Cycle of Sea Salt in the Global 3D Model Oslo CTM2: Concentrations, Fluxes, and Radiative Impact, Journal of Climate, 15(13), 1717–1730.

Guo, J., K.A. Rahn and G. Zhuang, 2004. A mechanism for the increase of pollution elements in dust storms in Beijing, Atmos. Env., 38(6), 855-862.

Guo, Z. G., J.L. Fenga, Ming Fanga, H.Y. Chena and K.H. Lau, 2004. The elemental and organic characteristics of PM2.5 in Asian dust episodes in Qingdao, China, 2002, Atmos. Env., 38(6), 909-919.

Guo, Z. T., W.F. Ruddiman, Q. Z. Hao, H. B. Wu, Y. S. Qiao, R. X. Zhu, S. Z. Peng, J. J. Wei, B. Y. Yuan and T. S. Liu, 2002. Onset of Asian desertification by 22 Myr ago inferred from loess deposits in China, Nature, 416(14), 159-162.

Halmer, M.M., Schmincke, H.U., Graf, H.F., 2002. The annual volcanic gas input into the atmosphere, in particular into the stratosphere: a global data set for the past 100 years, Journal of Volcanology and Geothermal Research 115 (3-4), 511-528.

Han, Z., H. Ueda, K. Matsuda, R. Zhang, K. Arao, Y. Kanai, and H. Hasome, 2004. Model study on particle size segregation and deposition during Asian dust events in March 2002, J. Geophys. Res., 109, D19205, doi:10.1029/2004JD004920.

Hansen, J., M. Sato, R. Ruedy, A. Lacis and V. Oinas, 2000. Global warming in the twenty-first century: An alternative scenario, PNAS, 97(18), doi:10.1073/pnas.170278997, 9875-9880.

Harris, S. J. and M. M. Maricq, 2001. Signature size distributions for diesel and gasoline engine exhaust particulate matter, J. Aerosol Sci., 32(6), 749-764.

Hatakeyama S., K. Murano, H. Bandow, H. Mukai and H. Akimoto, 1995. High Concentration of SO2 Observed Over the Sea of Japan, Terrestrial, Atmospheric and Oceanic Sciences, 6(3), 403-408.

Hatakeyama S., A. Takami,W. Wang and D. Tang, 2005. Aerial observation of air pollutants and aerosols over Bo Hai,China, Atmos. Env., 39(32), 5893–5898.

Haywood, J., V. Ramaswamy and B. Soden, 1999. Tropospheric aerosol climate forcing in clear-sky satellite observations over the oceans, Science, 283, 1299-1303.

Heckman, S.T. and W. R. Cotton, 1993. Mesoscale numerical simulation of cirrus clouds - fire case study and sensitivity analysis. Mon. Wea. Rev., 121, 2264-2284.

Herman, J.R, P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor and E. Celarier, 1997. Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, J. Geophys. Res., 102(D14), 16,911–16,922.

Holben B.N., D. Tanré, A. Smirnov, T.T. Eck, I. Slutsker, B. Chatenet, F. Lavenu, Y.J. Kaufman, J. Van de Castle, A. Setzer, B. Markham, D. Clark, R. Frouin, N A. Karneli, N. O'Neill, C. Pietras, Pinker, K. Voss and G. Zibordi, 2001. An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol Optical Depth from AERONET, J. Geophys. Res., 106, 12067-12097.

Hseung, Y., 1984. The Soil Atlas of China, Cartographic Publ., Beijing.

Huebert, B., T. Bertram, J. Kline, S. Howell, D. Eatough and B. Blomquist, 2004. Measurements of oganic and elemental carbon in Asian outflow during ACE-Asia from the NSF/NCAR C-130, J. geophys. Res., 109, D19S11, doi:10,1029/2004JD004700.

Huebert, B.J., T. Bates, P. B. Russell, G. Shi, Y. J. Kim, K. Kawamura, G. Carmichael and T. Nakajima, 2003. An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, J. Geophys. Res., 108 (D23), 8633, doi:10.1029/2003JD003550.

Husar, R. B., D. M. Tratt, B. A. Schichtel, S. R. Falke, F. Li, D. Jaffe, S. Gasso, T. Gill, N. S. Laulainen, F. Lu, M.C. Reheis, Y. Chun, D. Westphal, B. N. Holben, C. Gueymard, I. McKendry, N. Kuring, G. C. Feldman, C. McClain, R.J. Frouin, J. Merrill, D. DuBois, F. Vignola, T. Murayama, S. Nickovic, W. E. Wilson, K. Sassen, N. Sugimoto and W. C. Malm, 2001. Asian dust events of April 1998, J . Geophys. Res., 106, D16, 18,317-18,330.

Ichoku, Ch., L. Remer A., Y. J. Kaufman, R. Levy, D. A. Chu, D. Tanré and B.N. Holben, 2003. MODIS observation of aerosols and estimation of aerosol radiative forcing over southern Africa during SAFARI 2000, J. Geophys. Res., 108(D13), doi:10.1029/2002JD002366.

In, H.-J. and S.-U. Park, 2002. A simulation of long-range transport of Yellow Sand observed in April 1998 in Korea, Atmos. Environ., 36, 4173-4187.

IPCC, 2001. Climate Change 2001 : The Scientific Basis,. Cambridge University Press, Cambridge, UK, 291-336.

Ishizuka, M., Mikami M., Yamada Y., Zeng F. and Gao W., 2005. An observational study of soil moisture effects on wind erosion at a gobi site in the Taklimakan Desert, J. Geophys. Res., 110, D18S03, doi:10.1029/2004JD004709

Iversen, J.D. and B.R. White, 1982. saltation threshold on Earth, Mars and Venus, Sedimentology, 29, 111-119

Iziomon, M.G., and U. Lohmann, 2003. Characteristics and direct radiative effect of mid-latitude continental aerosols: the ARM case, 2003. Atmos. Chem. Phys., 3, 1903–1917. (www.atmos-chem-phys.org/acp/3/1903/)

Jacobson, M. J., 2001. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, Nature, 409, 695-697.

Jacobson, M. Z. 2002. Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming, J. Geophys. Res., 107(D19), 4410, doi:10.1029/2001JD001376.

Jones, C., N. Mahowald, and C. Luo, 2003. The role of easterly waves on African desert dust transport. Journal of Climate, 16, 3617-3628

Kalashnikova, O.V. and I. Sokolik, 2002. Importance of shapes and compositions of wind-blown dust particles for remote sensing at solar wavelengths, Geophys. Res. Lett., 29(10), 10.1029/2002GL014947.

Kasparian, J., 1997. Etude de spetroscopie linéaire et non linéaire d'aérosols atmosphériques, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I

Kato, S., Y. Kajii, R. Itokazu, J. Hirokawa, Seiichiro Koda and Yoshikatsu Kinjo, 2004. Transport of atmospheric carbon monoxide, ozone, and hydrocarbons from Chinese coast to Okinawa island in the Western Pacific during winter, Atmos. Env., 38(19), 2975-2981.

Katoshevski, D., A. Nenes and J. H. Seinfeld, 1999. A Study of Processes that Govern the Maintenance of Aerosols in the Marine Boundary Layer, J. Aerosol Sci., 30(4), 503-532.

Kinne S., U.Lohmann, J. Feichter, M. Schulz, C. Timmreck, S. Ghan, R. Easter, M. Chin, P. Ginoux, T. Takemura, I. Tegen, D. Koch, M. Herzog, J. Penner, G. Pitari, B. Holben, T. Eck, A. Smirnov, O. Dubovik, I. Slutsker, D. Tanré, O. Torres, M. Mishchenko, I. Geogdzhayev, D.A. Chu and Y.J. Kaufman, 2003. Monthly averages of aerosol properties: A global comparison among models, satellite data, and AERONET ground data, J. Geophys. Res., 108(D20), 4634, doi:10.1029/2001JD001253.

Klemp, J. B. and D. R. Durran, 1983. An upper boundary condition permetting internal gravity wave radiation in numerical mesoscale models. Mon. Wea. Rev., 111, 430-444.

Klemp, J. B. and R. B. wilhelmson, 1978. The simulation of three dimensional convective storm dynamics. J. Atmos. Sci., 35, 1070-1096.

Korhonen, H., I. Napari, C. Timmreck, H. Vehkamäki, L. Pirjola, K. E. J. Lehtinen, A. Lauri and M. Kulmala, 2003. Heterogeneous nucleation as a potential sulphate-coating mechanism of atmospheric mineral dust particles and implications of coated dust on new particle formation, J. Geophys. Res., 108(D17), 4546, doi:10.1029/2003JD003553.

Kristjánsson, J.E., 2002. Studies of the aerosol indirect effect from sulfate and black carbon aerosols, J. geophys. Res., 107(D15), 4246, doi:10,1029/2001JD000887.

Kubilay, N., T. Oguz, M. Koçak, O. Torres, 2005. Ground-based assessment of Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) data for dust transport over the northeastern Mediterranean, Global Biogeochem. Cycles, 19, GB1022, doi:10.1029/2004GB002370.

Kuhlbusch, T.A.J., M. O. Andreae, H. Cachier, J. G. Goldammer, J.-P. Lacaux, R. Shea, P. J. Crutzen, 1996. Black carbon formation by savanna fires: Measurements and implications for the global carbon cycle, J. Geophys. Res., 101(D19), 23651-23666, 10.1029/95JD02199.

Kulshrestha, M.J., U.C. Kulshrestha, D.C. Parashar and M. Vairami, 2003. Estimation of SO_4 contribution by dry seposition of SO_2 onto the dust particles in India, Atmos. Env., 37(22), 3057-3063.

Kurosaki, Y. and M. Mikami, 2004. Effect of snow cover on threshold wind velocity of dust outbreak. Geophys. Res. Lett., 31(3), L03106, doi:10.1029/2003GL018632.

Kwung, W. K., J. K. Young and J.Oh. Seung, 2001. Visibility impairment duringYellow Sand periods in the urban atmosphere of Kwangju, Korea, Atmos. Env., 35, 5157-5167.

Lavanchy, V.M.H., H.W. Gäggeler , S. Nyeki and U. Baltensperger, 1999. Elemental carbon (EC) and black carbon (BC) measurements with a thermal method and an aethalometer at the high-alpine research station Jungfraujoch, Atmos. Env., 33(17), 2759-2769.

Legrand, M., C. N'Doume and I. Jankowiak, I., 1994. Satellite-derived climatology of the Saharan aerosol, Passive Infrared remote sensing of clouds and the atmosphere II, D. K. Lynch (ed.), Proc. SPIE 2309, 127-135.

Legrand, M., A. Plana Fattori and C. N'doumé, 2001. Satellite detection of dust using the IR imagery of Meteosat 1. Infrared difference dust index., J. Geophys. Res., 106(D16), 18251-18274.

Legrand, M., J.J. Bertrand and M. Desbois, 1985. dust clouds over West Africa : a characterization by satellite data, Ann. Geophys., 3, 777-784.

Léon, J.-F., D. Tanré, J. Pelon, Y. Kaufman, J. Haywood and B. Chatenet, 2003. Profiling of a Saharan dust outbreak based on a synergy between active and passive remote sensing, J. Geophys. Res.,108(D18), doi:10.1029/2002JD002774.

Levy, R. C., L. Remer, D. Tanré, Y. Kaufman, Ch. Ichoku, B. Holben, J. Livingston, Ph. Russell and Hal Maring, 2003. Evaluation of the MODIS retrievals of dust aerosol over the ocean during PRIDE, J. Geophys. Res., 108(D19), 8594, doi:10.1029/2002JD002460.

Li Wei and Zhai Panmao,2004. Variability in Occurrence of China's Spring Dust Storm and its Relationship with Atmospheric General Circulation Acta Meteor Sinica, 17(4), 396-405.

Li, C., J. Mao and K.-H. Lau, 2003. Research on air pollution in Beijing and its surroundings with MODIS aerosol products, Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds III. Proceedings of the SPIE, Volume 4891, pp. 419-430.

Li, J., J.G.D. Wong, J.S. Dobbie and P. Chỳlek, 2001. Parameterization of the Optical Properties of Sulfate Aerosols, 58, 193-209.

Liousse, C., H. cachier and S.G. Jennings, 1993. Optical and thermal measurements of black carbon aerosol content in different environments: Variation of the specific attenuation cross-section, sigma, Atmos. Env., 27 A(7), 1203-1211.

Liston, G. E. and R. A. Pielke, 2001. A climate version of the regional atmospheric modeling system. Theor. and appl. climatology, 68, 155-173.

Liu, M., Liu M. and D. L. Westphal, 2001. A study of the sensitivity of simulated mineral dust production to model resolution. J. Geophys. Res., 106, 18099-18112.

Liu, W., Q. Feng, T. Wang, Y. Zhang and J. Shi, 2004. Physicochemistry and Mineralogy of Storm Dust and Dust Sediment in Northern China, Advances in Atmos. Sc., 21(5), 775-783.

Liu, X., J. Zhu, P. Van Espen, F. Adams, R. Xiao, S. Dong and Y. Li, 2005. Single particle characterization of spring and summer aerosols in Beijing: Formation of composite sulfate of calcium and potassium, Atmos. Env., 39(36), 6909-6918.

Louis, J.F., 1979. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. Bound-Layer Meteor., 17, 187-202.

Lowenthal, D.H., C.F. Rogers, P. Saxena, J.G. Watson and J.C. Chow, 1995. Sensitivity of estimated light extinction coefficients to model assumptions and measurement errors, Atmos. Env., 29(7), 751-766.

Luo, C., N. Mahowald, and C. Jones, 2004. Temporal variability of dust mobilization and concentration in source regions. J. Geophys. Res., 109, D20202, doi:10.1029/2004JD004861.

Luo, C., N. M. Mahowald and J. del Corral, Sensitivity study of meteorological parameters on mineral aerosol, mobilization, transport, and distribution, J. Geophys. Res., 108(D15), 4447, doi:10.1029/2003JD003483, 2003.

Ma, C-J., S. Tohno and M. Kasahara, 2005. A case study of the size-resolved individual particles collected at a ground-based site on the west coast of Japan during an Asian dust storm event, Atmos. Env., 39(4), 739-747.

Ma, C-J., S. Tohno, M. Kasahara and S. Hayakawa, 2004. Properties of individual Asian dust storm particles collected at Kosan, Korea during ACE-Asia, Atmos. Env., 38(8), 1133-1143.

Mahowald, N.M., P. J. Rasch, B. E. Eaton, S. Whittleston, and R. G. Prinn, 1997. Transport of 222 radon to the remote troposphere using the Model of Atmospheric Transport and Chemistry and assimilated winds from ECMWF and the National Centers for Environmental Prediction/NCAR. J. Geophys. Res., 102, 28 139–28 151

Marshall, J.K., 1971. Drag measurements in roughness arrays of varying density and distribution, Agric. Meteorol., 8, 269-292

Marticorena, B. and G.Bergametti. 1995. Modeling the atmospheric dust cycle: 1-Design of a soil derived production scheme, J. Geophys. Res., 100, 16415-16430.

Marticorena, B., G. Bergametti, B. Aumont, Y. Callot, C. N'Doumé and M. Legrand, 1997a. Modeling the atmospheric dust cycle: 2-Simulations of Saharan dust sources, J. Geophys. Res., 102, 4387-4404

Marticorena, B., G. Bergametti, D.A. Gillette and J. Belnap, 1997b. Factors controlling threshold friction velocity in semiarid and arid areas of the United States, J. Geophys. Res., 102, 23277-23287.

Martins, J.V., P. Artaxo, C. Liousse, J.S. Reid, P.V. Hobbs and Y.J. Kaufman, 1998. Effects of black carbon content, particle size and mixing on light absorption by aerosol particles from biomass burning in Brazil, J. Geophys. Res., 103(D24), 32041-32050.

Masclet, P. et H. Cachier, 1998. L'aérosol atmosphérique, Caractéristiques physico-chimiques, Analusis Magazine, 26(9), M11-M17.

Matsumoto, K., Y. Uyama, T. Hayamo, H. Tanimoto, I. Uno and M. Uematsu, 2003. Chemical properties of outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Characterization Experiment (ACE-Asia), J. geophys. Res., 108(D23), 8666, doi:10.1029/2003JD003246.

McKenna-Neumann, C. and W.G. Nickling, 1989. A theoritical and wind tunnel investigation of the effect of capillarity water on the entrainment of sediment by wind, Can. J. Soil Sci., 69, 35-50

McNaughton, C.S., A.D. Clarke, S.G. Howell, K.G. Moore II, V. Brekhovkikh, R.J. Weber, D.A. Orsini, D.S. Covert, G. Buzorius, F.J. Brechtel, G.R. Carmichael, Y. Tang, F.L. Eisele, R.L. Mauldin, A.R. Bandy, D.C Thornton and B. Blomquist, 2004. Spatial distribution and size evolution of particles in Asian outflow: Significance of primary and secondary aerosols during ACE-Asia and TRACE-P, J. Geophys. Res., 109, D19S06, doi:10,1029/2003JD003528,2004.

Menon, S., J. Hansen, L. Nazarenko and Y. Luo, 2002. Climate effects of black carbon aerosols in China and India, Science, 297(5590) , 2250-2253.

Mesinger, F. and A. Arakawa, 1976. Numerical methods used in atmospheric models. GARP Publication, Series, 14 :64.

Minvielle, F., 2003. Aspects physiques et radiatifs du cycle atmosphérique des aérosols : étude numérique sur l'Océan Indien (expérience INDOEX), Thèse de doctorat (Physique de l'Atmosphère), Université Blaise Pascal (U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique, Laboratoire de Météorologie Physique).

Minvielle, F., G. Cautenet, M. O. Andreae, F. Lasserre, G. Foret, S. Cautenet, J.-F. Léon, O.L. Mayol-Bracero, R. Gabriel, P. Chazette and R. Roca, 2004a. Modeling the transport of aerosols during INDOEX 1999 and comparison with experimental data. Part 1: carbonaceous aerosol distribution, Atmos. Environ., 38(12), 1811-1822.

Minvielle, F., G. Cautenet, F. Lasserre, G. Foret, S. Cautenet, J.-F. Léon, M. O. Andreae, O.L. Mayol-Bracero, R. Gabriel, P. Chazette and R. Roca, 2004b. Modeling the transport of aerosols during INDOEX 1999 and comparison with experimental data. Part 2: continental aerosol and their optical depth, Atmos. Environ., 38(12), 1823-1837.

Mönkönnen, P., I.K. Koponen, K.E J. Lehtinen, K.H¨ameri, R. Uma and M. Kulmala, 2002. Measurements in a highly polluted Asian mega city: observations of aerosol number size distribution, modal parameters and nucleation events, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 4, 5407-5431.

Morcrette., J. J. , 1989. Description of the radiation scheme in the ECMWF model. Res. Dep. of the European Center for Medium Range Weather Forecasts, Reading, England. 165.

Mori, I., M. Nishikawa, H. Quan and M. Morita, 2002. Estimation of the concentration and chemical composition of kosa aerosols at their origin, Atmos. Env., 36(29), 4569-4575.

Moulin, C. and I. Chiapello, 2004. Evidence of the control of summer atmospheric transport of African dust over the Atlantic by Sahel Source from TOMS satellites (1979-2000), Geophys. Res. Lett., 31, L02107, doi:10.1029/2003GL018931.

Mukabana, J. R. and R. A. Pielke, 1996. Investigating the influence of synoptic-scale monsoonal winds and meso-scale circulation on diurnal weather patterns over kenya using a mesoscale numerical model. Mon.Wea. Rev., 124, 224-243.

Mukhopadhyay P., 2004. Idealized simulation of a thunderstorm over Kolkata, using RAMS, J. Ind. Geophys. Union, 8(4), 253-266.

Murayama, T., N. Sugimoto, I. Uno. K. Kinoshita, K. Aoki, N. Hagiwara, Z. Liu, I. Matsui, T. Sakai, T. Shibata, K. Arao, B-J. Sohn, J-G. Won, S-C. Yoon, T. Li, J. Zhou, H. Hu, M. Abo, K. Iokibe, R. Koga and Y. Iwasaka, 2001. Ground-based network observation over dust events of April 1998 in east Asia, *J. Geophys. Res.*, *106*, D16,18,345-18,359.

Natsagdorj, L., D. Jugder and Y.S. Chung, 2003. Analysis of dust storms observed in Mongolia during 1937-1999. Atmos. Environ., 37, 1401-1411.

Nicling, W.G. and Gillies, J.A., 1989. Emission of fine-grained particulates from deserts soils, in Paleoclimatology and Paleometorology: Modern and Past Patterns of Global Atmospheric Transport, leinen M., M. Sarnthein (Eds.), Kluwer Academic; Publ., Dordrecht, 133-165.

Nicling, W.G., 1994. Aeolian sediment transport and deposition, in Sediment Transport and Depositional Processes, K. Pye 5ed.), Blackwell Scientific Publications, 293-350.

Novakov, T., V. Ramanathan, J. E. Hansen, T. W. Kirchstetter, M. Sato, J. E. Sinton and J. A. Sathaye, 2003. Large historical changes of fossil-fuel black carbon aerosols, Geophys. Res. Lett., 30(6), 1324, doi:10.1029/2002GL016345.

Novakov, T., S.G. Chang and A.B. Harker, 1974. Sulfates as pollution particles: catalytic formation on carbon (soot) particles, Science 186, 259-261.

Olivier, J.G., J., Bouwman, A.F., Van der Maas, C.W.M., Berdowski, J.J.M., Veldt, C., Bloos, J.P.J., Visschedijk, A.J.H., Zandveld, P.Y.J., and Haverlag, J.L., 1996. Description of EDGAR Version 2.0. A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on 1°x1° grid. RIVM/TNO report. RIVM, Bilthoven, RIVM report n. 771060 002. (TNO MEP report nr. R96/119).

Osada, K., H. Iida, M. Kido, K. Matsunaga and Y. Iwasaka, 2004. Mineral dust layers in snow at Mount Tateyama, Central Japan : formation processes and characteristics, Tellus, 56B, 382-392.

Park, M.H., Y.P. Kim, C-H. Kang and S-G. Shim, 2004. Aerosol composition change between 1992 and 2002 at Gosan, Korea, J. Geophys. Res., 109, D19S13, doi:10,1029/2003JD004110,2004.

Park, S-U., L-S. Chang and E-H. Lee, 2005. Direct radiative forcing due to aerosols in East Asiaduring a Hwangsa (Asian dust) event observed on 19–23 March 2002 in Korea, Atmos. Env., 39(14), 2593-2606.

Penner, J.E., S.Y. Zhang, M. Chin, C.C. Chuang, J. Feichter, Y. Feng, I.V. Geogdzhayev, P. Ginoux, M. Herzog, A. Higurashi, D. Koch, C. Land, U. Lohmann, M. Mishchenko, T. Nakajima, G. Pitari, B. Soden, I. Tegen and L. Stowe, 2002. A Comparison of Model- and Satellite-Derived Aerosol Optical Depth and Reflectivity, J. of the Atmospheric Sc. , 59(3), 441–460.

Power, H. C. and D. M. Mills, 2005. Solar radiation climate change over southern Africa and an assessment of the radiative impact of volcanic eruptions, International Journal of Climatology, 25(3), 295-318.

Pradelle, F., G. Cautenet and I. Jankowiak, 2002. Radiative and microphysical interactions between marine stratocumulus clouds and saharan dust 2. modelling. J. Geophys. Res., 107 (D19) :DOI 10.1029/2000JD000156.

Pye, K., 1987. Aeolian Dust and Dust Deposit, Academic Press, San Diego (USA), 334 pp.

Qian, W., Q. Lingshen and S. Shaoyin, 2002. Variations of the Dust Storm in China and its Climatic Control, Journal of Climate, 15(10), 1216–1229.

Qiu, J. and L. Yang, 2000. Variation characteristics of atmospheric aerosol optical depths and visibility in North China during 1980-1994, Atmos. Env., 34, 603-609.

Qiu, J-H. and J-H. Sun, 1994. Optically Remote Sensing of the Dust Storm and Result Analysis. Scientia Atmospherica Sinica, 18 (1), 1-10.

Rasch, P. J., N. M. Mahowald, and B. E. Eaton, 1997: Representations of transport, convection and the hydrologic cycle in chemical transport models: Implications for the modeling of short-lived and soluble species. J. Geophys. Res., 102 (D23), 18 127–28 138.

Reddy, M.S. and O. Boucher, 2006. Climate Impact of Black carbon emitted from Energy Consumption in the World's regions, Geophys. Res. Lett., (soumis pour publication).

Ricard, V., 2001. Aerosols dans l'arctique europeen: Sources, transformations et propriétés optiques, Thèse de doctorat, CNRS-Université Joseph Fourier (Grenoble-I), Laboratoire de Glaciologie et géophysique de l'Environnement.

Rodriguez, S. X. Querol, A. Alastuey, G. Kallos and O. Kakaliagou, 2001. Saharan dust contributions to PM10 and TSP levels in Southern and Eastern Spain, Atmos. Environ., 35, 2433−2447.

Roelofs, G.J., P. Kasibhatla, L. Barrie, D. Bergmann, C. Bridgeman, M. Chin, J. Christensen, R. Easter, J. Feichter, A. Jeunken, E. Kjellström, D. Koch, C. Land, U. Lohmann and P. Rasch, 2001. Analysis of regional budgets of sulfur species modeled for the COSAM exercise, Tellus, 53B, 5, 673-64.

Sano, I., S. Mukai, Y. Okada, B.N. Holben, S. Ohta and T. Takamura, 2003. Optical properties of aerosol during APEX and ACE-Asia experiments, J. Geophys. Res., 108(D23), 8649, doi:10.1029/2002JD003263.

Sato, M., J. Hansen, D. Koch, A. Lacis, R. Ruedy, O. Dubovik, B. Holben, M. Chin and Tica Novakov, 2300. Global atmospheric black carbon inferred from AERONET, PNAS, 100(11), 6319-6324, (www.pnas.org/cgi/content/abstract/100/11/6319)

Schaefer V.J et J.A. Day, 1997. L'atmosphère : Guide d'interprétation des phènomènes atmsophériques - Ottawa : Broquet, 357p (Les guides peterson)

Schwartz, S.E., 1996. The whitehouse effect - Shortwave radiative forcing of climate by anthropogenic aerosols: an overview, J. Aerosol Sci., 27(3), 359-382.

Seftor, C.J., N.C. Hsu, J.R. Herman, P.K. Bhartia, O. Torres, W.I. Rose, D.J. Schneider and N. Krotkov, 1997. Detection of volcanic ash clouds from Nimbus 7/total ozone mapping spectrometer, J. Geophys. Res., 102, D14, 16749-16759.

Seinfeld, J.H. and S.N Pandis, 1998. Atmospheric Chemistry and Physics: From air pollution to climate change, Wiley, New York, 1326 pp.

Shao, Y. and H. Lu, 2000. A simplified expression for threshold friction velocity, J. Geophys. Res., 105, 22437-22443.

Shao, Y. and L. Wang, 2003. A climatology of northeast Asian dust events, Meteorol. Z., 12, 187-196.

Shao, Y., 2000. Physics and Modelling of Wind Erosion, Kluwer Academic Publishers, 393 pp.

Shao, Y., 2001. A model for mineral dust emission, J. Geophys.Res., 106, 20239-20254

Shao, Y., Raupach M.R. and J.F. Leys, 1996. A model for predicting aeolian sand drift and dust entrainment on scales from paddock to region, Aust. J. Soil Res., 34, 309-342.

Shao, Y., Y. Yang, J. Wang, Z. Song, L. M. Leslie, C. Dong, Z. Zhang, Z. Lin, Y. Kanai, S. Yabuki and Y. Chun 2003, Northeast Asian dust storms: Real-time numerical prediction and validation, J. Geophys. Res., 108(D22), 4691, doi:10.1029/2003JD003667.

Shen, Y., Z. Shen, M. Du and W. Wang, 2005. Dust Emission over Different Land Surface in the Arid Region of Northwest China, J. Meteor. Soc. Japan, 83(6), 935-942.

Shi, Z.B., L.Y. Shao, T.P. Jones, A.G. Whittaker, S.L. Lu, K.A. Berube, T.O. He and R.J Richards, 2003. Characterization of airborne individual particles collected in an urban area, a satellite city and a clean air area in Beijing, 2001. Atmos. Env., 37(29), 4097-4108.

Shimizu, A., N. Sugimoto, I. Matsui, K. Arao, I. Uno, T. Murayama, N. Kagawa, K. Aoki, A. Uchiyama, and A. Yamazaki, 2004. Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia. J. Geophys. Res., D19S17, doi:10.1029/2002JD003253.

Smirnov, A., B.N. Holben, O. Dubovik, N.T. O'Neill, T.F. Eck, D.L. Westphal, A.K. Goroch, C. Pietras and I. Slutsker, 2002. Atmospheric Aerosol Optical Properties in the Persian Gulf, J. Atmos. Sc., 59(3), 620-634.

Solmon, F., F. Giorgi and C. Liousse, 2006. Aerosol modelling for regional climate studies: application to anthropogenic particles and evaluation over a European/African domain, Tellus 58B, 51-72.

Stern, D., 2006. Reversal of the trend in global anthropogenic sulfur emissions. Global Environmental Change, Vol 16 (sous presse).

Strand, M., S. Vedal, C.Rodes, S.J. Duttond, E.W. Gelfande and N. Rabinovitch, 2006. Estimating effects of ambient $PM_{2.5}$ exposure on health using $PM_{2.5}$ component measurements and regression calibration, Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology, 16, 30–38.

Streets, D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernades, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo and K.F. yarber, 2003. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. J. Geophys. Res., 108, D21, 8809, doi:10.1029/2002JD003093.

Streets, D.G., N.Y. Tsai, H. Akimoto and K. Oka, 2000. Sulfur dioxide emissions in Asia in the period 1985–1997, Atmos. Env., 34(26), 4413-4424.

Sugimoto, N. I. Matsui, A. Shimizu, I. Uno, K. Asai, T. Endoh, and T. Nakajima, 2002. Observation of dust and anthropogenic aerosol plumes in the Northwest Pacific with a two-wavelength polarization lidar on board the research vessel Mirai. Geophys. Res. Lett., 29(19), 1901, doi:10.1029/2002GL015112.

Sugimoto, N., I. Uno, M. Nishikawa, A. Shimizu, I. Matsui, X. Dong, Y. Chen, and H. Quan, 2003. Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events. Geophys. Res. Lett., 30(12), 1640, doi:10.1029/2002GL016349.

Sun, J. M., T. S. Liu, and Z. F. Lei, 2000. Sources of heavy dust fall in Beijing, China on April 16, 1998, Geophys. Res. Lett., 27, 2105-2108.

Sun, J. M., 2002. Provenance of loess material and formation of loess deposits on the Chinese Loess Plateau, Earth planet. Sci. Lett., 203, 845-859.

Sun, J. M., 2005. Nd and Sr isotopic variations in Chinese eolian deposits during the past 8 Ma, Implications for provenance change, Earth planet. Sci. Lett., 240, 454-466.

Sun, J. M., M. Zhang and T. S. Liu, 2001. Spatial and temporal characteristics of dust storms in China and its surrounding regions, 1960-1999 : relations to source area and climate, J. Geophys. Res., 106, D10,10,325-10,333.

Sun, Y., G. Zhuang, Y. Wang, L. Han, J. Guo, M. Dan, W. Zhang, Zifa Wang and Z. Hao, 2004. The air-borne particulate pollution in Beijing—concentration, composition, distribution and sources, Atmos. Env., 38(35), 5991-6004.

Sun, Z., X. Wang and X. Zeng, 2006. Radiative Forcing of SO_2 and NO_x: A Case Study in Beijing. Advances in Atmos. Sc., 23(2), 317–322.

Sundar, A.C. and J. Wang, 2004. Intercomparison between multi-angle imaging spetroradiometer (MISR) and sunphotometer aerosol optical thickness in dust source regions over China: implications for satellite aerosol retrievals and radiative forcing calculations, Tellus, 56B, 451-456.

Ta, W., Wang T., X. Honglang, Z. Xueyi and X. Zhen, 2004. Gaseous and particulate air pollution in the Lanzhou Valley, China, Science of the Total Environment, 320(2-3), 163-176.

Takemi, T., and N. Seino, 2005. Duststorms and Mesoscale Cloud Systems over The East Asian Deserts in Spring, Water, Air and Soil Pollution: Focus, 5, Numbers 3-6, doi: 10.1007/s11267-005-0733-0, 159-174.

Takemura, T., T. Nakajima, A. Higurashi, S. Ohta and N. Sugimoto, 2003. Aerosol distributions and radiative forcing over the Asian Pacific region simulated by Spectral Radiation_Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS), J. Geophys. Res., 108(D23), 8659, doi:10.1029/2002JD003210.

Takemura, T., T. Nakajima, T. Nozawa and K. Aoki, 2001. Simulation of Future Aerosol Distribution, Radiative Forcing, and Long-Range Transport in east Asia, J. Meteor. Soc. Japan, 79(6), 1139-1155.

Tan, Q., Y. Huang and W. L. Chameides, 2002. Budget and export of anthropogenic So_x from East Asia during continental ouflow conditions, J. Geophys. Res., 107, D13, 4167, doi:1029/2001JD000769.

Tang, Y., G.R. Carmichael, G. Kurata, I. Uno, R.J. Weber, C-H. Song, S.K. Guttikunda, J-H. Woo, D.G. Streets, C. Wei.; A.D. Clarke, B. Huebert and T.L. Anderson, 2004. Impacts of dust on regional tropospheric chemistry during the ACE-Asia experiment: A model study with observations, J. Geophys. Res., 109, D19S21, doi:10,1029/2003JD003806,2004.

Tanré D, Y.J. Kaufman, M. Herman and S. Mattoo, 1997. Remote sensing of aerosols properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, J. Geophys. Res., 102, 16971-16988.

Tegen, I. and I. Fung, 1995. Contribution to the mineral aerosol load from land surface modification, J. geophys. Res., 100(D9), 18707-18726.

Tegen, I. and I. Fung, 1994. Modeling of mineral dust in the atmosphere: Sources, transport and optical thickness, J. Geophys. Res., 99(D11), 22897–22914.

Tegen, I., D. Koch, A.A. Lacis and M. Sato, 2000. Trends in tropospheric aerosol loads and corresponding impact on direct radiative forcing between 1950 and 1990: A model study, *J. Geophys. Res.*, 105(D22), 26971–26990.

Tingle, T. N., R. S. Borch, M. F. Hochella, Jr. , C. H. Becker and W. J. Walker, 1993. Characterization of lead on mineral surfaces in soils contaminated by mining and smelting, Applied Surface Science, 72(4), 301-306.

Torres, O., J. R. Herman, P. K. Bhartia and A. Sinyuk, 2002. Aerosol properties from EP-TOMS near UV observations, Advan. Space Res., 29(11), 1771-1780

Tremback, C. J., 1990. Numerical simulation of a mesocale convective complex : model development and numerical results. Atmospheric Science and university of Colorado.

Tremback, C. J., and R. Kessler. A surface temperature and moisture parametrization for use in mesoscale numerical models. In 7th Conference on Numerical Weather Prediction, Montreal, Canada, June 1985. AMS

Tsai, F., T-H. Liu, S.C. Liu, T-Y. Chen, T.L. Anderson and S.J. Masonis, 2004. Model simulation and analysis of coarse and fine particle distributions during ACE-Asia, J. Geophys. Res.,109, D19S20,doi:10,1029/2003JD003665,2004.

Tsukuda, S. M. Sugiyamab, Y. Haritab and K. Nishimura, 2005. Atmospheric bulk deposition of soluble phosphorus in Ashiu Experimental Forest, Central Japan : next term source apportionment and sample contamination problem, Atmos. Env., 39(5), 823-836.

Twohy C. H., M. D. Petters, J. R. Snider, B. Stevens, W. Tahnk, M. Wetzel, L. Russell and F. Burnet, 2005. Evaluation of the aerosol indirect effect in marine stratocumulus clouds: Droplet number, size, liquid water path, and radiative impact, J. Geophys. Res., 110, D08203, doi:10.1029/2004JD005116.

Twomey, S. 1974. Pollution and the planetary albedo, Atmos. Environ., 8, 1251-1256, 1974.

Uno, I. S. Satake, G.R. Carmichael, Y. Tang, Z. Wang, T. Takemura, N. Sugimoto, A Shimizu, T. Murayama, T. Cahill, S. Cliff, M. Uematsu, S. Ohta, P. Quinn and T. Bates, 2004. Numerical Study of Asian Dust Transport during the Springtime of 2001 simulated with the CFORS model, J. Geophys. Res.,109, D19S24,doi:10,1029/2003JD004222,2004.

Uno, I. G.R. Carmichael, D. Streets, S. Satake, T. Takemura, J.-H. Woo, M. Uematsu and S. Ohta, 2003. Analysis of surface black carbon distributions during ACE-Asia using a regional-scale aerosol model, J. Geophys. Res.,108, D23, 8636, doi:10,1029/2002JD003252.

Uno, I., K. Harada, S. Satake, Y. Hara and Z. Wang, 2005. Meteorological Characteristics and Dust Distribution of the Tarim Bassin Simulated by the Nesting RAMS/CFORS Dust Model, J. Meteor. Soc. Japan, 83A, 219-239.

Uno, I., H. Amano, S. Emori, K. Kinoshita, I. Matsui, and N. Sugimoto, 2001. Trans-Pacific yellow sand transport observed in april 1998: A numerical simulation, J. Geophys. Res., 106, D16, 18,331-18,344.

Vinnikov, K.Y and N.C. Grody, 2003. Global Warming Trend of Mean Tropospheric Temperature Observed by Satellites, Science, 302, doi:10.1126/science.1087910, 269-272.

Wald, A., Y. Kaufman, D.Tanré and B.C Gao, 1998. Daytime and nighttime detection of mineral dust over desert using infrared spectral contrast, J. Geophys. Res., 103, 32307-32313.

Wang, C., 2004. A modeling study on the climate impacts of black carbon aerosols, J. geophys. Res., 109, D03106, doi:10.1029/2003JD004084.

Wang, G., J. Bai, Q. Kong and A. Emilenko, 2005. Black Carbon Particles in the Urban Atmosphere in Beijing, Advances in Atmos. Sc., 22(5). 640-646.

Wang, T., C.H. Wong, T.F. Cheung, D.R. Blake, R. Arimoto, K. Baumann, J. Tang, G.A. Ding, X.M. Yu, Y.S. Li, D.G. Streets and I.J. Simpson, 2004. Relationships of trace gases and aerosols and the emission characteristics at Lin'an, a rural site in eastern China, during spring 2001, J. Geophys. Res., 109, D19S05, doi:10,1029/2003JD004119.

Wang, T., C. N. Poon, Y. H. Kwok and Y. S. Li, 2003. Characterizing the temporal variability and emission patterns of pollution plumes in the Pearl River Delta of China, Atmos. Env., 37(25), 3539-3550.

Wang, Y., G. Zhuang, X. Zhang, K. Huang, C. Xu, A. tang, J. Chen and Z. An, 2006. The ion chemistry, seasonal cycle, and sources of PM2.5 and TSP aerosol in Shanghai, Atmos. Env., 40(16), 2935-2952.

Washington, R., M. Todd, N. J. Middleton and A. S. Goudie, 2003. Dust-Storm Source Areas Determined by the Total Ozone Monitoring Spectrometer and Surface Observations, Annals of the Association of American Geographers, 93(2), p. 297.

Woodward, S., 2001. Modeling the atmospheric life-cycle and radiative impact of mineral dust in the Hadley center climate model, J. Geophys. Res., 106(D16), 18155-18166.

Wu, J., W. Jiang, C. Fu, B. Su, H. Liu and J. Tang, 2004. Simulation of the Radiative Effect of Black Carbon Aerosols and the Regional Climate Responses over China, Advances in Atmos. Sc., 21(4), 637-649.

Xia, X.-A.., H.-B. Chen, P.-C. Wang, X.-M. Zong, J.-H; Qiu and P. Goulomb, 2005. Aerosol properties and their spatial and temporal variations over North China in spring 2001, Tellus, 57(B), 28-39.

Xiao, H., G. R. Carmichael and J. Durchenwald, 1997. Long-range transport of SO_x and dust in East Asia during the PEM B Experiment, J . Geophys. Res., 102, D23, 28,589-28,612.

Xie, S., T. Yu, Y. Zhang, L. Zeng, L. Qi and X. tang, 2005. Characteristics of PM_{10}, SO_2, No_x and O_3 in ambient air during the dust storm period in Beijing, Sc. Tot. Env., 345, 153-164.

Xu, X., J. Gao, D.W Dockery and Y. Chen, 1994. Air pollution and daily mortality in residential areas of Beijing, China. Arch. Environ. Health, 49(4), 216-22.

Xu, Y., and G.R. Carmichael, 1998. Modeling the Dry Deposition Velocity of Sulfur Dioxide and Sulfate in Asia, J. Appl. Meteor., 37(10), 1084–1099.

Xuan, J. and I. N. Sokolik, 2002. Characterization of sources and emission rates of mineral dust in Northern China, Atmos. Environ., 36, 4863-4876.

Yang, J., J. Wang, D. Cao, C.Ge and S. Gao, 2002. Pollution Control Strategy Based on Performance in Power Sector, CRAES Research Report.

Yao, X., Arthur P. S. Lau, M. Fang, C. K. Chan and M. Hu, 2003. Size distributions and formation of ionic species in atmospheric particulate pollutants in Beijing, China: 1—inorganic ions, Atmos. Env., 37(21), 2991-3000.

Yao, X., C. K. Chan, M. Fang, S. Cadle, T. Chan, P. Mulawa, K. He and Boming Ye, 2002. The water-soluble ionic composition of PM2.5 in Shanghai and Beijing, China, Atmos. Env., 36(26), 4223-4234 .

Yu, J., B. Guinot, T. Yu, X. Wang and W. Liu, 2005. Seasonal Variations of Number Size Distributions and Mass Concentrations of Atmospheric Particles in Beijing, Advances in Atmos. Sc, 22(3), 401-407.

Zazen, Y., K. Okada, M. Ikegami, Y. Sawa and Y. Makino, 2004. Number-size Distributions of Aerosol Particles in the Free Troposphere over the Northwestern Pacific Ocean—Influence of Asian Outflow and Tropical Air Transport, J. Meteor. Soc. Japan, 82(4), 1147-1160.

Zender, C., H. Bian and D. Newman, 2003. The mineral dust entrainment and deposition (dead) model: Description and global dust distribution, J. Geophys. Res., 108 (D14), 4416, doi:10.1029/2002JD002775.

Zhang, D., J. Zang, G. Shi, Y. Iwasaka, A. Matsuki and D. Trochkine, 2003. Mixture state of individual Asian dust particles at a coastal site of Qingdao, Atmos. Env., 37(28), 3895-3901.

Zhang, D., Y. Iwasaka, G. Shi, J. Zang, M. Hu and C. Li, 2005. Separated status of the natural dust plume and polluted air masses in an Asian dust storm event at coastal areas of China, 2005. J. Geophys. Res., 110, D06302, doi:10.1029/2004JD005305.

Zhang, K.M., A.S. Wexlera, Y.F. Zhud, W.C. Hindsd and C. Sioutase, 2004. Evolution of particle number distribution near roadways. Part II: the 'Road-to-Ambient' process, Atmos. Env., 38(38), 6655-6665.

Zhang, X., R. Arimoto, Z. An, T. Chen, G. Xhang, G. Zhu and X. Wang, 1993, Atmospheric trace elements over source regions for Chinese dust: concentrations, sources and Environment, Atmos. Env., 27A, 2051–2067.

Zhang, X.Y., S.L. Cong, T.L. Zhao, R. Arimoto, Y.Q. Wang and Z.J, 2003. Sources of Asian dust and role of climate change versus desertification in Asian dust emission, Geophys. Res. Lett., 30(24), 2272, doi:10.1029/2003GL018206.

Zhang, X.Y., S. L. Gong, Z. X. Shen, F. M. Mei, X. X. Xi, L. C. Liu, Z. J. Zhou, D. Wang, Y. Q. Wang, and Y. Cheng, 2003b. Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 1. Network observations, J. Geophys. Res., 108(D9), 4261, doi:10.1029/2002JD002632.

Zhang, X.Y., R. Arimoto and Z. S. An, 1997. Dust emission from Chinese desert sources linked to variations in atmospheric circulation, J. Geophys. Res., 102, D23, 28,041-28,047.

Zhang, Y. and G.R. Carmichael, 1999. The Role of Mineral Aerosol in Tropospheric Chemistry in East Asia—A Model Study, J. Appl. Meteor., 38(3), 353–366.

Zhang, Y., Y. Tian, Y. Knyazikhin, J.V. Martonchik, D. J. Diner, M. Leroy, and R.B. Myneni, 2000. Prototyping of MISR LAI and FPAR Algorithm with POLDER Data over Africa, IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 38(5), 2402-2418.

Zhang, Y., X. Zhu, S. Slanina, M. Shao, L. Zeng, M. Hu, M. Bergin and L. Salmon, 2004b. Aerosol Pollution in some Chinese Cities (IUPAC Technical Report), Pure Appl. Chem., 76(6), 1227–1239.

Zhenghu, D., X. Honglang, D. Zhibao, H. Xingdong and W. Gang, 2001. Estimate of total CO_2 output from desertified sandy land in China, Atmos. Env., 35(4), 5915-5921.

Zhou, Z., and G. Zhang, 2003. Typical severe dust storms in northern China during 1954-2002, Chinese Science Bulletin, 48(21), 2366-2370.

Modélisation du cycle d'aérosols naturels et anthropiques en Asie orientale

RESUME :

Cette thèse est une contribution au thème crucial de l'impact climatique de la matière particulaire dans l'atmosphère, dont on soupçonne qu'il pourrait être du même ordre que l'effet de serre des gaz, mais peut-être de signe opposé. L'outil central de ce travail est le modèle météorologique RAMS. Ce travail exploite les rares données de terrain disponibles dans cette région, données indispensables pour la validation des calculs par modèle. Sur la base d'un DPM validé en Afrique, nous proposons ainsi un cadastre d'émission éolienne de poussières désertiques à 1°×1° recouvrant les zones désertiques et semi-arides en Mongolie et Chine du Nord. Cette source est validée par l'étude d'une forte tempête de poussières minérales datant d' Avril 1998. Nous montrons ensuite son aptitude à restituer en détail un épisode de tempête de sable enregistré au printemps 2002 en un site expérimental de la campagne ACE-ASIA. Enfin, nous couplons le transport atmosphérique des poussières désertiques issues de ce cadastre avec les émissions de certains des gaz et aérosols les plus représentatifs des émissions anthropiques de polluants en Asie de l'Est. Les processus de transport et de chimie très simplifiés appliqués aux BC (particules carbonées) et au SO_2 aboutissent à des mélanges et des captures quantifiables de sulfates par les poussières minérales. Les calculs d'épaisseurs optiques caractéristiques de chaque polluant dans les mélanges sont en bon accord avec les données photométriques (Lidar, AERONET etc.) et permettent de conclure que le parti pris de notre méthode simplificatrice donne une approche des observations à la fois correcte et aisément interprétable par le nombre réduit des paramètres choisis.

Mots clés : Aérosols, Asie, Modélisation méso-échelle, Poussières minérales, Cadastre d'émission éolienne, Pollution anthropique, Epaisseur optique.

Natural and anthropogenic aerosol cycle modelling in Eastern Asia

SUMMARY:

This thesis is a contribution to the study of the climatic impact of particles in the atmosphere, an impact that is suspected of being of the same magnitude as the greenhouse effect but may be of opposite sign.

The main tool of this work is the RAMS meteorological model. This work exploits the scarce field data available in this geographic area, data that cannot be dispensed with to validate the model calculations. On the basis of a DPM validated in Africa, I propose a source of desert dust wind emissions, at 1°x1°, covering the desert and semi-arid zones of Mongolia and Northern China. This source is validated by the study of a strong mineral dust storm in April 1998. We then demonstrate its ability to recreate in detail part of a dust storm recorded in Spring 2002 on an experimental site of the ACE-ASIA campaign. Finally, we couple the atmospheric transportation of the desert dust issued by this source with some of the most representative gases and aerosols from human anthropogenic pollution sources in Eastern Asia. The very simplified transportation and chemical processes applied to the BC (Black Carbon) and to the SO_2, result in mixes and captures of a quantifiable amount of sulphates by the mineral dust. The calculations of the optical thickness specific to each pollutant in the mix are in good correlation with the photometric data (Lidar, AERONET etc…) and allow me to conclude that this simplified methodology provides an approach to observations that is both correct and easily comprehensive thanks to a limited number of parameters.

Key-words: Aerosols, Asia, Mesoscale modelling, Mineral dust, Wind emission source, Anthropogenic pollution, Optical thickness.